22.12.2004

日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application: 2004年 2月13日

出 願 番 号 Application Number: 特願2004-036230

REC'D 2 0 JAN 2005

[ST. 10/C]:

[JP2004-036230]

WIPO PCT

出 願 人
Applicant(s):

住友化学株式会社

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年11月10日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 1) (")



特許願 【書類名】 【整理番号】 P156717 平成16年 2月13日 【提出日】 特許庁長官殿 【あて先】 A01N 29/02 【国際特許分類】 101 A01N 37/34 CO7C 19/10 C07C255/04 【発明者】 兵庫県宝塚市高司四丁目2番1号 住友化学工業株式会社内 【住所又は居所】 大平 大輔 【氏名】 【発明者】 兵庫県宝塚市高司四丁目2番1号 住友化学工業株式会社内 【住所又は居所】 【氏名】 大高 健 【特許出願人】 【識別番号】 000002093 住友化学工業株式会社 【氏名又は名称】 【代理人】 100093285 【識別番号】 【弁理士】 久保山 隆 【氏名又は名称】 06-6220-3405 【電話番号】 【選任した代理人】 【識別番号】 100113000 【弁理士】 【氏名又は名称】 中山 亨 06-6220-3405 【電話番号】 【選任した代理人】 100119471 【識別番号】 【弁理士】 榎本 雅之 【氏名又は名称】 06-6220-3405 【電話番号】 【先の出願に基づく優先権主張】 特願2003-431908 【出願番号】 平成15年12月26日 【出願日】 【手数料の表示】 010238 【予納台帳番号】 21,000円 【納付金額】 【提出物件の目録】 特許請求の範囲 1 【物件名】 明細書 1 【物件名】 【物件名】 図面 1 要約書 1 【物件名】

0212949

【包括委任状番号】

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

式 (I)

$$CN$$
 $R-CH_2-C-CH_2-Q$
 CN
 CN

〔式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、

Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲ ン原子で置換されていてもよいC2-С6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていて もよいС2-С6アルキニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいС3-С7シクロ アルキル基又はハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1 - C 4 アルキル基を表す。〕

で示されるニトリル化合物。

【請求項2】

RがC2フルオロアルキル基である請求項1記載のニトリル化合物。

【請求項3】

Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基である請求項1または2に記 載のニトリル化合物。

【請求項4】

請求項1~3いずれか一項記載のニトリル化合物を有効成分として含有することを特徴 とする有害生物防除剤。

【請求項5】

請求項1~3いずれか一項記載のニトリル化合物の有効量を有害生物又は有害生物の生 育場所に施用することを特徴とする有害生物の防除方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】ニトリル化合物ならびにその有害生物防除用途

【技術分野】

[0001]

本発明は、フルオロアルキル基を含有するニトリル化合物ならびにその有害生物防除用途に関する。

【背景技術】

[0002]

従来から、昆虫、ダニ及び線虫等の有害生物の防除を目的とする化合物ならびにそれらの化合物による防除方法が提供されている。しかしながら、場合によりそれらの化合物が充分な効力を示さないことがある。

また、ある種のフルオロアルキル基を含有するニトリル化合物が、抗てんかん剤の成分 化合物の製造中間体として知られている。

[0003]

【特許文献1】特開平4-21652号公報。

[0004]

【特許文献2】特開平6-116200号公報。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0005]

本発明は、有害生物に対して優れた防除効力を有する化合物ならびにその化合物の有害生物防除用途を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

[0006]

本発明者等は、優れた有害生物防除効力を有する化合物を見出すべく鋭意検討を重ねた結果、下記式(I)で示されるニトリル化合物が昆虫並びにダニ等の節足動物及び線虫等の有害生物に対して優れた防除活性を有することを見出し本発明に至った。

即ち、本発明は、式(I)

$$R-CH_2-C-CH_2-Q \qquad (I)$$

[式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基又はハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基を表す。〕で示されるニトリル化合物(以下、本発明化合物と記す)、本発明化合物を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤及び本発明化合物の有効量を有害生物若しくは有害生物の生息場所に施用することを特徴とする有害生物の防除方法を提供する。

【発明の効果】

[0007]

本発明により、昆虫、ダニ及び線虫等の有害生物を効果的に防除することができる。【発明を実施するための最良の形態】

[0008]

本発明において、

ハロゲン原子とは、フッ素原子、塩素原子、臭素原子を表し、

"C1-C6アルキル基"という表記は、全炭素数が1から6であるアルキル基を表し、

"C1-C4 フルオロアルキル基"という表記は、対応する水素原子の全てあるいは一部がフッ素原子で置換されており、かつ全炭素数が1から4であるアルキル基を表し、

"C3-C7シクロアルキル"における"C3-C7"という表記は、環構造を構成する 炭素原子と環構造を構成する炭素原子に結合するアルキル基の炭素原子とをあわせた全炭 素数が3から7であることを表す。

[0009]

Rで示されるC1-C4アルキル基としては、例えばトリフルオロメチル基、1-モノ フルオロエチル基、2-モノフルオロエチル基、1,1-ジフルオロエチル基、2,2-ジフルオロエチル基、2,2,2-トリフルオロエチル基、1,1,2,2-テトラフル オロエチル基、1,2,2,2-テトラフルオロエチル基、1,1,2,2,2-ペンタ フルオロエチル基等のС1-С2フルオロアルキル基;

$[0\ 0\ 1\ 0]$

2-フルオロプロピル基、3-フルオロプロピル基、1,1-ジフルオロプロピル基、2 2-ジフルオロプロピル基、2,3-ジフルオロプロピル基、3,3-ジフルオロプロ ピル基、1,2,2ートリフルオロプロピル基、2,2,3ートリフルオロプロピル基、 3,3,3ートリフルオロプロピル基、1,1,2,2ーテトラフルオロプロピル基、2 , 2, 3, 3ーテトラフルオロプロピル基、2, 3, 3, 3ーテトラフルオロプロピル基 、2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基、1,1,2,3,3,3-ヘキサフ ルオロプロピル基等のC3フルオロアルキル基;

$[0\ 0\ 1\ 1]$

1-フルオロブチル基、2-フルオロブチル基、3-フルオロブチル基、4-フルオロブ チル基、1,1-ジフルオロブチル基、2,2-ジフルオロブチル基、2,3-ジフルオ ロブチル基、2,4-ジフルオロブチル基、3,3-ジフルオロブチル基、4,4-ジフ ルオロブチル基、1,2,2ートリフルオロブチル基、2,2,3ートリフルオロブチル 基、3,3,4ートリフルオロブチル基、3,4,4ートリフルオロブチル基、4,4, 4-トリフルオロブチル基、1,1,2,2-テトラフルオロブチル基、2,2,3,3 ーテトラフルオロブチル基、3,3,4,4ーテトラフルオロブチル基、3,4,4,4 ーテトラフルオロブチル基、3,3,4,4,4ーペンタフルオロブチル基、2,2,3 , 3, 4, 4-ヘキサフルオロブチル基、1, 1, 2, 2, 3, 3-ヘキサフルオロブチ ル基、1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基等のС4フルオロアル キル基が挙げられる。

$[0\ 0\ 1\ 2]$

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C6アルキル基としては、例 えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、2-メチルプロピル基、1,1-ジメチルエチル基、ペンチル基、イソペンチル基、ネオペン チル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、3,3-ジメチルブチル基、

$[0\ 0\ 1\ 3]$

モノフルオロメチル基、ジフルオロメチル基、トリフルオロメチル基、モノクロロメチル 基、ジクロロメチル基、トリクロロメチル基、モノブロモメチル基、1-モノフルオロエ チル基、2-モノフルオロエチル基、1-モノクロロエチル基、2-モノクロロエチル基 、1-モノブロモエチル基、2-モノブロモエチル基、1,1-ジフルオロエチル基、2 2-ジフルオロエチル基、1,2,2-トリフルオロエチル基、2,2,2-トリフル オロエチル基、1,1,2,2-テトラフルオロエチル基、1,1,2,2,2-ペンタ フルオロエチル基、2-クロロー1-メチルエチル基、1-フルオロプロピル基、2-フ ルオロプロピル基、3ーフルオロプロピル基、3ークロロプロピル基、3ーブロモプロピ ル基、1,1-ジフルオロプロピル基、2,2-ジフルオロプロピル基、3,3-ジフル オロプロピル基、2,3,3-トリフルオロプロピル基、3,3,3-トリフルオロプロ ピル基、3-クロロ-3,3-ジフルオロプロピル基、3,3-ジクロロ-3-フルオロ プロピル基、2, 2, 3, 3ーテトラフルオロプロピル基、2, 2, 3, 3, 3ーペンタ フルオロプロピル基、1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロプロピル基、1,1,2 , 2, 3, 3, 3ーヘプタフルオロプロピル基、2ーグロロー3ーブロモー2, 3, 3ー トリフルオロプロピル基、3ーブロモー2,2,3,3ーテトラフルオロプロピル基、2 , 3, 3, 3ーテトラフルオロー2ー(トリフルオロメチル)プロピル基、

$[0\ 0\ 1\ 4\]$

4-フルオロブチル基、4-クロロブチル基、4-ブロモブチル基、2-フルオロブチル 基、2,2ージフルオロブチル基、3ーフルオロブチル基、3,3ージフルオロブチル基 、4,4-ジフルオロブチル基、2,2,3-トリフルオロブチル基、2,2,3,3-テトラフルオロブチル基、2,2,3,4-テトラフルオロブチル基、3,3,4,4-テトラフルオロブチル基、3-クロロ-3,4,4-トリフルオロブチル基、3-クロロ -4-ブロモ-3, 4, 4-トリフルオロブチル基、3, 4-ジクロロ-3, 4, 4-ト リフルオロブチル基、2,2,3,4,4ーペンタフルオロブチル基、2,2,3,4, 4, 4-ヘキサフルオロブチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4-ヘキサフルオロブチル基、 2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル基、3, 4, 4, 4ーテトラフルオ ロ - 3 - (トリフルオロメチル) ブチル基、<math>1, 1, 2, 2, 3, 3, 4, 4 - オクタフルオロブチル基、

[0015]

5-フルオロペンチル基、5-クロロペンチル基、5-ブロモペンチル基、2-フルオロ ペンチル基、2-クロロペンチル基、2,2-ジフルオロペンチル基、2,3-ジフルオ ロペンチル基、2,2-ジクロロペンチル基、2,3-ジクロロペンチル基、3,4-ジ フルオロペンチル基、3,4-ジクロロペンチル基、2,2,3-トリフルオロペンチル 基、2,2,3,3ーテトラフルオロペンチル基、2,2,3,3,4ーペンタフルオロ フルオロペンチル基、2,2,3,3,4,4-ヘキサフルオロペンチル基、2,2,3 , 3, 4, 4, 5ーヘプタフルオロペンチル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5ーオク タフルオロペンチル基、2,2,3,3,4,4,5,5,5-ノナフルオロペンチル基 、3-フルオロペンチル基、3-クロロペンチル基、3,3-ジフルオロペンチル基、3 ,3-ジクロロペンチル基、3,3,4-トリフルオロペンチル基、

[0016]

3,3,4,4ーテトラフルオロペンチル基、3,3,4,4,5ーペンタフルオロペン チル基、3,4,5,5,5-ペンタフルオロペンチル基、3,4,4,5,5-ペンタ フルオロペンチル基、3,3,4,4,5,5-ヘキサフルオロペンチル基、3,3,4 ,4,5,5,5-ヘプタフルオロペンチル基、4-フルオロペンチル基、4,4-ジフ ルオロペンチル基、4,4,5-トリフルオロペンチル基、4,4,5,5-テトラフル オロペンチル基、4,4,5,5,5-ペンタフルオロペンチル基、5,5-ジフルオロ ペンチル基、5,5,5-トリフルオロペンチル基、

$[0\ 0\ 1\ 7]$

6-フルオロヘキシル基、6-クロロヘキシル基、6-ブロモヘキシル基、2,2-ジフ ルオロヘキシル基、3-フルオロヘキシル基、3,3-ジフルオロヘキシル基、4-フル オロヘキシル基、4,4-ジフルオロヘキシル基、5,5-ジフルオロヘキシル基、2, 2,3-トリフルオロヘキシル基、2,2,3,3-ヘキサフルオロヘキシル基、2,2 , 3, 3, 4ーペンタフルオロフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4ーヘキサフ ルオロヘキシル基、2,2,3,3,4,4,5-ヘプタフルオロヘキシル基、2,2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5 , 6-ノナフルオロヘキシル基、2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6-デカフルオ ロヘキシル基、2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,6ーウンデカフルオロヘキシ ル基3-フルオロヘキシル基、1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデ カフルオロヘキシル基、3,3-ジフルオロヘキシル基、3,3,4-トリフルオロヘキ シル基、3,3,4,4-ヘキサフルオロヘキシル基、3,3,4,4,5-ペンタフル オロヘキシル基、3,3,4,4,5,5-ヘキサフルオロヘキシル基、3,3,4,4 ,5,5,6-ヘプタフルオロヘキシル基、4-フルオロヘキシル基、4,4-ジフルオ ロヘキシル基、4,4,5-トリフルオロヘキシル基、4,4,5,5-ヘキサフルオロ ヘキシル基、4,4,5,6,6-ペンタフルオロヘキシル基、4,4,5,5,6,6 - ヘキサフルオロヘキシル基、4,4,5,5,6,6,6-ヘプタフルオロヘキシル基 、5-フルオロヘキシル基、5, 5-ジフルオロヘキシル基、5, 5, 6-トリフルオロヘキシル基、5, 5, 6, 6-ペンタフルオロヘキシル基、6, 6-ジフルオロヘキシル基、6, 6-ドリフルオロヘキシル基、6, 6-ドリフルオロヘキシル基が挙げられる。

[0018]

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6 アルケニル基としては、例えばビニル基、アリル基、1-プロペニル基、2-メチル-1-プロペニル基、2-メチル-2-プロペニル基、3-ブテニル基、2-ブテニル基、1-ブテニル基、3-メチル-2-ブテニル基、4-ペンテニル基、3-ペンテニル基、2-ペンテニル基、1-ペンテニル基、4-メチル-3-ペンテニル基、5-ヘキセニル基、4-ヘキセニル基、3-ヘキセニル基、2-ヘキセニル基、1-ヘキセニル基、3-

[0019]

1ーフルオロビニル基、2ーフルオロビニル基、1ークロロビニル基、2ークロロビニル基、2,2ージフルオロビニル基、2,2ージクロロビニル基、2,2ージブロモビニル基、2,3,3ートリフルオロー2ープロペニル基、3,3,3ートリフルオロー1ープロペニル基、4,4ートリフルオロー3ーブテニル基、4,4ートリフルオロー2ーブテニル基、5,5ージフルオロー4ーペンテニル基、4,5,5ートリフルオロー4ーペンテニル基、5,5,5ートリフルオロー3ーペンテニル基、6,6ージフルオロー5ーへキセニル基、5,6,6ートリフルオロー5ーへキセニル基、5,6,6ートリフルオロー5ーへキセニル基、5,6,6ートリフルオロー5ーへキセニル基が挙げられる。

[0020]

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基としては例えばエチニル基、1-プロピニル基、2-プロピニル基、1-ブチニル基、2-プロピニル基、3-プチニル基、3-ペンチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ペンチニル基、2-ペンチニル基、3-ペンチニル基、4-ペンチニル基、1-ペキシニル基、2-ペキシニル基、3-ペキシニル基、4-ペキシニル基、3-ペキシニル基、4-ペキシニル基、3-ペキシニル基、3-ペキシニル基、3-ペキシニル基、3-ペキシニル基、3-ペキシニル基が多げられる。

[0021]

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基としては、例えばシクロプロピル基、1-メチルシクロプロピル基、2-メチルシクロプロピル基、2, 2-ジメチルシクロプロピル基、2, 3-ジメチルシクロプロピル基、2, 2, 3-ドリメチルシクロプロピル基、2, 2, 3, 3-テトラメチルシクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロペンチル基、シクロペンチル基、シクロペンチル基、シクロペンチル基、シクロプロピル基、2, 2-ジフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-トリフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-トリフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-トリフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-テトラフルオロシクロプロピル基、2, 2, 3-テトラクロロシクロプロピル基が挙げられる。

[0022]

Qで示されるハロゲン原子で置換されていてもよい(C 3 - C 7 シクロアルキル)C 1 - C 4 アルキル基としては、例えばシクロプロピルメチル基、2 - (シクロプロピル) エチル基、3 - (シクロプロピル)プロピル基、(1 - メチルシクロプロピル)メチル基、2 - (1 - メチルシクロプロピル) エチル基、3 - (1 - メチルシクロプロピル) プロピル基、シクロブチルメチル基、1 - (1 - メチルシクロプロピル) プロピル基、シクロブチルメチル基、1 - (1 - スチルシクロプロピル) プロピル基、1 - (1 - フルオロシクロプロピル) メチル基、1 - (1 - フルオロシクロプロピル) エチル基、1 - (1 - フルオロシクロプロピル) エチル基、1 - (1 - フルオロシクロプロピル) エチル基、1 - (1 - ブロピル) メチル基、1 - (1 - ブロピル) メチル基、1 - (1 - ブロピル) メチル基、1 - (1 - ブロピル) エチル基、1 - (1 - ブロピル) エチル基、1 - (1 - ブロピル) エチル基、1 - (1 - ブロピル) エチル基、シクロペンチルメチル基、シクロペキシルメチル基、1 - (1 - ブロアルオロシクロプロピル) エチル基、シクロペンチルメチル基、シクロペキシルメチル基、1 - (1 - ブロアルオロシク

ロプロピル) エチル基、1-(2,2,3,3-テトラフルオロシクロプロピル) エチル 基、4-(シクロプロピル)ブチル基、3-(シクロプロピル)ブチル基、2-(シクロ プロピル)ブチル基、4-(1-フルオロシクロプロピル)ブチル基、4-(2-フルオ ロシクロプロピル) ブチル基、4-(2,2-ジフルオロシクロプロピル) ブチル基、4 - (2, 2, 3-トリフルオロシクロプロピル) ブチル基及び4-(2, 2, 3, 3-テ トラフルオロシクロプロピル)ブチル基が挙げられる。

[0023]

本発明化合物の態様としては、例えば以下の化合物が挙げられる。

- 式(I)において、Rが2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物;
- 式 (I) において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,1,2,3,3-ヘキサフルオロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合 物;
- 式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であ るニトリル化合物;
- 式 (I) において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であ るニトリル化合物;

[0024]

- 式(I)において、Rがトリフルオロメチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、RがC2フルオロアルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロエチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,2,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル基であるニトリル化合物;

[0025]

- 式(I)において、RがC3フルオロアルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが3,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基であるニトリル化合物;

[0026]

- 式(I)において、RがC4フルオロアルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2-ジフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,2,2-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2,3-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが1,1,2,2-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2,3,3-テトラフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが3,3,4,4,4-ペンタフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Rが2,2,3,3,4,4-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式 (I) において、Rが1,1,2,2,3,3-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物;

[0027]

- 式(I)において、Qがハロゲン原子であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが臭素原子であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが塩素原子であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがフッ素原子であるニトリル化合物;

[0028]

- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいС1-С6アルキル基であ るニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC1アルキル基であるニト リル化合物;

- 式(I)において、Qがメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがモノフルオロメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがジフルオロメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがトリフルオロメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがモノクロロメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがジクロロメチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがモノブロモメチル基であるニトリル化合物; [0029]式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2アルキル基であるニト リル化合物; 式(I)において、Qがエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが1,1-ジメチルエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが1-モノクロロエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2-モノクロロエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2-モノブロモエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2-モノフルオロエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2,2-ジフルオロエチル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2,2,2-トリフルオロエチル基であるニトリル化合物; 式 (I) において、Qが1,1,2,2-テトラフルオロエチル基であるニトリル化合物; 式 (I) において、Qが1,1,2,2,2-ペンタフルオロエチル基であるニトリル化合物; [0030]式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3アルキル基であるニト リル化合物; 式(I)において、Qがプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qがイソプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが3-クロロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが3-クロロ-2-プロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが3-フルオロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが3-ブロモプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2,3-ジクロロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2,3-ジフルオロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが3,3,3-トリフルオロプロピル基であるニトリル化合物; [0031]式(I)において、Qが2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが2,2,3,3,3-ペンタフルオロプロピル基であるニトリル化合物; 式(I)において、Qが1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロプロピル基であるニトリル化合物 式(I)において、Qが1,1,2,2,3,3,3-ヘプタフルオロプロピル基であるニトリル化合 物; 式(I)において、Qが2-クロロ-3-ブロモ-2,3,3-トリフルオロプロピル基である ニトリル化合物; 式(I)において、Qが3-ブロモ-2,2,3,3-テトラフルオロプロピル基であるニトリル 式 (I) において、Qが2-(トリフルオロメチル)-2,3,3,3-テトラフルオロプロピル 基であるニトリル化合物; [0032]式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基であるニト
 - リル化合物;
 - 式(I)において、Qがブチル基であるニトリル化合物;
 - 式(I)において、Qがイソブチル基であるニトリル化合物;

- 式(I)において、Qが4-クロロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが4,4,4-トリフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが4-ブロモ-3-クロロ-3,4,4-トリフルオロブチル基であるニ トリル化合物;
- 式(I)において、Qが4-ブロモ-3,3,4,4-テトラフルオロブチル基であるニトリル化 合物;
- 式 (I) において、Qが3- (トリフルオロメチル) -3,4,4,4-テトラフルオロブチル基 であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3,3,4,4,4ーペンタフルオロブチル基であるニトリル化合物;
- 式 (I) において、Qが2,2,3,3,4,4,4ーヘプタフルオロブチル基であるニトリル化合物
- 式(I)において、Qが1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合

[0033]

- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC5アルキル基であるニト リル化合物;
- 式(I)において、Qがペンチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがイソペンチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが5,5,5-トリフルオロペンチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3,3,4,4,5,5,5-ヘプタフルオロペンチル基であるニトリル化合
- 式(I)において、Qが2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル基であるニトリル化 合物;
- 式(I)において、Qが2,2,3,3,4,4,5,5,5-ノナフルオロペンチル基であるニトリル化 合物;

$[0\ 0\ 3\ 4\]$

- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC6アルキル基であるニト リル化合物;
- 式(I)において、Qがヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがイソヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが6,6,6-トリフルオロヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが5,5,6,6,6-ペンタフルオロヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが4,4,5,5,6,6,6-ヘプタフルオロヘキシル基であるニトリル化合 物;
- 式(I)において、Qが3,3,4,4,5,5,6,6-オクタフルオロヘキシル基であるニトリル化
- 式 (I) において、Qが3,3,4,4,5,5,6,6,6-ノナフルオロヘキシル基であるニトリル化 合物;
- 式(I) において、Qが1,1,2,2,3,3,4,4,5,5,6,6-ドデカフルオロヘキシル基であるニ トリル化合物;

[0035]

- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルケニル基で あるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいビニル基であるニトリル化
- 式(I)において、Qがビニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが1-メチルビニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが1-プロペニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが2-プロペニル基であるニトリル化合物;

- 式(I)において、Qが2,3,3-トリフルオロ-2-プロペニル基であるニトリル化合物;
- 【0036】 式(I)において、Qが1-ブテニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが2-ブテニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3-メチル-2-ブテニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが4,4,4ートリフルオロ-2-ブテニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3-ブテニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3,4,4-トリフルオロ-3-ブテニル基であるニトリル化合物;

[0037]

- 式 (I) において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがエチニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが1-プロピニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが3,3,3-トリフルオロ-1-プロピニル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが2-プロピニル基であるニトリル化合物;

[0038]

- 式 (I) において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがシクロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qが2,2-ジクロロシクロプロピル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがシクロブチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロペンチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがシクロペンチル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいシクロヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがシクロヘキシル基であるニトリル化合物;
- 式 (I) において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい(C3-C7シクロアルキル)C1-C4アルキル基であるニトリル化合物;

[0039]

- 式(I)において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基である ニトリル化合物;
- 式 (I) において、Qが6~8個のフッ素原子を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物;
- 式 (I) において、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物;
- 式(I)において、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基である ニトリル化合物;
- 式 (I) において、Qが6~8個のフッ素原子を有するC3-C4アルキル基であるニトリル化合物;

[0040]

式 (I) において、Rがフッ素原子 $3\sim 5$ 個を有する C 2-C 4 フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい C 4-C 6 アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物:

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC4-C6アルキル基であるニトリル化合物

式(I)において、Rがフッ素原子 $6\sim 8$ 個を有する C 3-C 4 フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよい C 4-C 6 アルキル基であるニトリル化合物・

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qが6~8個のフッ素原子を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qが6~8個のフッ素原子を有するC4-C6アルキル基であるニトリル化合物;

式 (I) において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qが6~8個のフッ素原子を有するC3-C4アルキル基であるニトリル化合物;

式 (I) において、Rがフッ素原子6~8個を有するC3-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、Rがフッ素原子3~5個を有するC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがフッ素原子で置換されていてもよいC3-C4アルキル基であるニトリル化合物・

式 (I) において、Rがフッ素原子 $6\sim8$ 個を有する C3-C4 フルオロアルキル基であり、Qが $6\sim8$ 個のフッ素原子を有する C3-C4 アルキル基であるニトリル化合物;

[0041]

式(I)において、RがC2フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C4アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、Rが2,2,2-トリフルオロエチル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC1-C4アルキル基であるニトリル化合物;

式 (I) において、RがC2-C4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基であるニトリル化合物;

式 (I) において、RがC2フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよいC4アルキル基であるニトリル化合物;

式(I)において、RがC2フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物;

式(I)において、RがC4フルオロアルキル基であり、Qがハロゲン原子で置換されていてもよい1,1,2,2,3,3,4,4-オクタフルオロブチル基であるニトリル化合物;

[0042]

次に本発明化合物の製造法について説明する。

本発明化合物は例えば、以下の(製造法1)、(製造法2)又は(製造法3)にしたがって製造することができる。

[0043]

(製造法1)

本発明化合物は、化合物 (a) と化合物 (b) とを反応させることにより製造することができる。

$$R \longrightarrow CH_2 \longrightarrow X^1 + HC \longrightarrow CH_2 \longrightarrow Q \longrightarrow R \longrightarrow CH_2 \longrightarrow CH_2$$

[式中、R及びQは前記と同じ意味を表し、 X^1 は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、メタンスルホニルオキシ基、トルエンスルホニルオキシ基又はトリフルオロメタンスルホニルオキシ基を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチルエーテル、メチルー tertーブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4ージオキサン等のエーテル類、N,Nージメチルホルムアミド等の酸アミド類、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる化合物 (a) の量は、化合物 (b) 1 モルに対して通常 $1 \sim 1$ 0 モルの割合である。

反応に用いられる塩基の量は、化合物 (b) 1モルに対して通常 1~10 モルの割合である。

該反応の反応温度は通常 $-20\sim100$ $\mathbb C$ の範囲であり、反応時間は通常 $0.1\sim24$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、 濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本発明化合物を単離することができる。単離 した本発明化合物は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製するこ ともできる。

[0044]

(製造法2)

本発明化合物は、化合物 (c) と化合物 (d) とを反応させることにより製造することができる。

[式中、R及びQは前記と同じ意味を表し、 X^2 は塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子、メタンスルホニルオキシ基、トルエンスルホニルオキシ基又はトリフルオロメタンスルホニルオキシ基を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン 等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチ ルエーテル、メチルーtertーブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1, 4ージオキ サン等のエーテル類、N, Nージメチルホルムアミド等の酸アミド類、ジメチルスルホキ シド等のジアルキルスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素 化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルア ミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる化合物 (d) の量は、化合物 (c) 1モルに対して通常 1~10モル の割合である。

反応に用いられる塩基の量は、化合物 (c) 1モルに対して通常1~10モルの割合で ある。

該反応の反応温度は通常 $-20\sim100$ ℃の範囲であり、反応時間は通常 $0.1\sim24$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、 濃縮する等の後処理操作を行うことにより、本発明化合物を単離することができる。単離 した本発明化合物は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製するこ ともできる。

[0045]

(製造法3)

本発明化合物のうち、QがRと同一のC1-C4フルオロアルキル基である化合物(I I) は、化合物(e)とマロノニトリルとを反応させることにより製造することもできる

〔式中、 R^1 及び Q^1 は同一のC1 - C4 フルオロアルキル基を表し、 X^3 は塩素原子、臭 素原子、ヨウ素原子、トルエンスルホニル基、トリフルオロメタンスルホニル基を表す。

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン 等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチ ルエーテル、メチルーtert-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4-ジオキ サン等のエーテル類、N, Nージメチルホルムアミド等の酸アミド類、ジメチルスルホキ シド等のジアルキルスルホキシド類及びこれらの混合物が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素 化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルア ミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物 (e) 1モルに対して、マロノニトリルが通常 0 . $3 \sim 1$ モルの割合であり、塩基が通常 0. $6 \sim 5$ モルの割合である。

該反応の反応温度は通常 $-20\sim100$ ℃の範囲であり、反応時間は通常 $0.1\sim36$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、 濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(II)を単離することができる。単 離した化合物(II)は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製す ることもできる。

[0046]

次に本発明化合物の製造中間体の製造について説明する。

化合物(b)は、例えば化合物(d)とマロノニトリルとを反応させることにより製造 することができる。

$$\begin{array}{c}
CN \\
CH_2 \\
CN
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CN \\
CH_2 \\
CN
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CH \\
CH_2 \\
CN
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CN \\
CH_2 \\
CN
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CN \\
CH_2 \\
CN
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
CN \\
CN
\end{array}$$

[式中、Q及びX²は前記と同じ意味を表す。]

該反応は、通常溶媒中、塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン 等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチ ルエーテル、メチルーtertーブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4ージオキ サン等のエーテル類、N,Nージメチルホルムアミド等の酸アミド類及びこれらの混合物 が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物(d) 1 モルに対して、マロノニトリルが通常 1 ~ 1 0 モルの割合であり、塩基が通常 0 . 5 ~ 5 モルの割合である。

該反応の反応温度は通常 $-20\sim100$ $\mathbb C$ の範囲であり、反応時間は通常 $0.1\sim24$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、 濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物(b)を単離することができる。単離 した化合物(b)は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製するこ ともできる。

[0047]

化合物(c)は、例えば化合物(a)とマロノニトリルとを反応させることにより製造することができる。

$$R \longrightarrow CH_2 \longrightarrow X^1 + CH_2 \longrightarrow R \longrightarrow CH_2 \longrightarrow CH$$

$$CN \qquad \qquad CN \qquad \qquad CH_2 \longrightarrow CH$$

$$CN \qquad \qquad CN \qquad \qquad CH_2 \longrightarrow CH$$

$$CN \qquad \qquad CO \qquad \qquad CN$$

$$CN \qquad \qquad CO \qquad CO \qquad \qquad CO \qquad CO$$

「式中、R及びX1は前記と同じ意味を表す。]

該反応は、通常溶媒中、通常塩基の存在下で行われる。

反応に用いられる溶媒としては例えばヘキサン、ヘプタン、オクタン、シクロヘキサン 等の脂肪族炭化水素類、トルエン、キシレン、メシチレン等の芳香族炭化水素類、ジエチ ルエーテル、メチルーtertーブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1,4ージオキ サン等のエーテル類、N,Nージメチルホルムアミド等の酸アミド類及びこれらの混合物 が挙げられる。

反応に用いられる塩基としては例えば炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等の炭酸塩、水素化ナトリウム等のアルカリ金属水素化物及びトリエチルアミン、ジイソプロピルエチルアミン等の第三級アミンが挙げられる。

反応に用いられる試剤の量は、化合物(a)1モルに対して、マロノニトリルが通常1 \sim 10モルの割合であり、塩基が通常0.5 \sim 5 モルの割合である。

該反応の反応温度は通常 $-20\sim100$ ^Cの範囲であり、反応時間は通常 $0.1\sim24$ 時間の範囲である。

反応終了後は、反応混合物を水に注加し、有機溶媒抽出して得られた有機層を、乾燥、 濃縮する等の後処理操作を行うことにより、化合物 (c) を単離することができる。単離 した化合物 (c) は必要に応じてクロマトグラフィー、再結晶等の操作により精製するこ ともできる。

[0048]

また、化合物 (c) はJ. Chem. Soc. Perkin Trans. 1, 258 9-2592 (1991) に記載された方法により製造することもできる。

[0049]

本発明化合物が防除効力を示す有害生物としては、例えば昆虫並びにダニ等の節足動物 及び線虫が挙げられる。より具体的には例えば下記のものが挙げられる。

半翅目害虫:ヒメトビウンカ(Laodelphax striatellus)、トビイロウンカ(Nilaparvat a lugens)、セジロウンカ (Sogatella furcifera) 等のウンカ類、ツマグロヨコバイ (N ephotettix cincticeps)、タイワンツマグロヨコバイ (Nephotettix virescens) 等のヨ コバイ類、ワタアブラムシ(Aphis gossypii)、モモアカアブラムシ(Myzus persicae) 等のアブラムシ類、アオクサカメムシ (Nezara antennata) 、ホソヘリカメムシ (Riptor tus clavetus)、オオトゲシラホシカメムシ(Eysarcoris lewisi)、トゲシラホシカメ ムシ (Eysarcoris parvus) 、チャバネアオカメムシ (Plautia stali) 、クサギカメムシ (Halyomorpha mista) 等のカメムシ類、オンシツコナジラミ(Trialeurodes vaporarior um)、シルバーリーフコナジラミ (Bemisia argentifolii) 等のコナジラミ類、アカマル カイガラムシ(Aonidiella aurantii)、サンホーゼカイガラムシ(Comstockaspis perni ciosa)、シトラススノースケール(Unaspis citri)、ルビーロウムシ(Ceroplastes ru bens)、イセリヤカイガラムシ(Icerya purchasi)等のカイガラムシ類、グンバイムシ 類、トコジラミ (Cimex lectularius) 等のトコジラミ類、キジラミ類等;

[0051]

鱗翅目害虫:ニカメイガ (Chilo suppressalis) 、コブノメイガ (Cnaphalocrocis medin alis)、ワタノメイガ(Notarcha derogata)、ノシメマダラメイガ(Plodia interpunct ella) 等のメイガ類、ハスモンヨトウ (Spodoptera litura) 、アワヨトウ (Pseudaletia separata)、トリコプルシア属、ヘリオティス属、ヘリコベルパ属等のヤガ類、モンシ ロチョウ (Pieris rapae) 等のシロチョウ類、アドキソフィエス属、ナシヒメシンクイ (Grapholita molesta)、コドリンガ(Cydia pomonella)等のハマキガ類、モモシンクイ ガ (Carposina niponensis) 等のシンクイガ類、リオネティア属等のハモグリガ類、リマ ントリア属、ユープロクティス属等のドクガ類、コナガ(Plutella xylostella)等のス ガ類、ワタアカミムシ(Pectinophora gossypiella)等のキバガ類、アメリカシロヒトリ (Hyphantria cunea) 等のヒトリガ類、イガ(Tinea translucens)、コイガ(Tineola b isselliella)等のヒロズコガ類等;

[0052]

双翅目害虫:アカイエカ (Culex pipiens pallens) 、コガタアカイエカ (Culex tritaen iorhynchus)、ネッタイイエカ (Culex quinquefasciatus) 等のイエカ類、ネッタイシマ カ (Aedes aegypti) 、ヒトスジシマカ (Aedes albopictus) 等のエーデス属、(Anophel es sinensis) 等のアノフェレス属、ユスリカ類、イエバエ (Musca domestica) 、オオイ エバエ (Muscina stabulans) 等のイエバエ類、クロバエ類、ニクバエ類、ヒメイエバエ 類、タネバエ (Delia platura) 、タマネギバエ (Delia antiqua) 等のハナバエ類、ミバ 工類、ショウジョウバ工類、オオキモンノミバエ(Megaselia spiracularis)等のノミバ エ類、オオチョウバエ (Clogmia albipunctata) チョウバエ類、ブユ類、アブ類、サシバ エ類、ハモグリバエ類等;

[0053]

鞘翅目害虫:ウエスタンコーンルートワーム(Diabrotica virgifera virgifera)、サザ ンコーンルートワーム (Diabrotica undecimpunctata howardi) 等のコーンルートワーム 類、ドウガネブイブイ(Anomala cuprea)、ヒメコガネ(Anomala rufocuprea)等のコガ ネムシ類、メイズウィービル (Sitophilus zeamais) 、イネミズゾウムシ (Lissorhoptru s oryzophilus)、アズキゾウムシ(Callosobruchuys chienensis)等のゾウムシ類、チ ャイロコメノゴミムシダマシ (Tenebrio molitor) 、コクヌストモドキ (Tribolium cast

aneum) 等のゴミムシダマシ類、イネドロオイムシ(Oulema oryzae)、ウリハムシ(Aula cophora femoralis)、キスジノミハムシ(Phyllotreta striolata)、コロラドハムシ(Leptinotarsa decemlineata)等のハムシ類、ハラジロカツオブシムシ(Dermestes macula tes)等のカツオブシムシ類、シバンムシ類、ニジュウヤホシテントウ(Epilachna vigint ioctopunctata)等のエピラクナ類、ヒラタキクイムシ類、ナガシンクイムシ類、ヒョウホンムシ類、カミキリムシ類、アオバアリガタハネカクシ(Paederus fuscipes)等。ゴキブリ目害虫:チャバネゴキブリ(Blattella germanica)、クロゴキブリ(Periplane ta fuliginosa)、ワモンゴキブリ(Periplaneta americana)、トビイロゴキブリ(Periplaneta brunnea)、トウヨウゴキブリ(Blatta orientalis)等;

[0054]

アザミウマ目害虫:ミナミキイロアザミウマ (Thrips palmi) 、ネギアザミウマ (Thrips tabaci) 、ミカンキイロアザミウマ (Frankliniella occidentalis) 、ヒラズハナアザミウマ (Frankliniella intonsa) 等;

膜翅目害虫:イエヒメアリ(Monomorium pharaosis)等のアリ類、スズメバチ類、アリガタバチ類、ニホンカブラバチ (Athalia japonica) 等のハバチ類等;

直翅目害虫:ケラ類、バッタ類等;

隠翅目害虫:ネコノミ (Ctenocephalides felis) 、イヌノミ (Ctenocephalides canis)、ヒトノミ (Pulex irritans) 、ケオプスネズミノミ (Xenopsylla cheopis) 等。シラミ目害虫:コロモジラミ (Pediculus humanus corporis) 、ケジラミ (Phthirus pub is)、ウシジラミ (Haematopinus eurysternus) 、ヒツジジラミ (Dalmalinia ovis) 等;シロアリ目害虫:ヤマトシロアリ (Reticulitermes speratus) 、イエシロアリ (Coptote rmes formosanus) 、イースタンサブテラニアンターマイト (Reticulitermes flavipes) 、ウエスタンサブテラニアンターマイト (Reticulitermes virginicus) 、アリッドランドサブテラニアンターマイト (Reticulitermes tibialis) 、デザートサブテラニアンターマイト (Heter otermes aureus) 等のサブテラニアンターマイト類、アメリカカンザイシロアリ (Incisi termes minor) 等のドライウッドターマイト類、およびネバダダンプウッドターマイト (Zootermopsis nevadensis) 等のダンプウッドターマイト類等;

[0055]

ダニ目害虫:ナミハダニ(Tetranychus urticae)、カンザワハダニ(Tetranychus kanza wai)、ミカンハダニ(Panonychus citri)、リンゴハダニ(Panonychus ulmi)、オリゴ ニカス属等のハダニ類、ミカンサビダニ(Aculops pelekassi)、リンゴサビダニ(Aculu s schlechtendali) 等のフシダニ類、チャノホコリダニ (Polyphagotarsonemus latus) 等のホコリダニ類、ヒメハダニ類、ケナガハダニ類、フタトゲチマダニ(Haemaphysalis longicornis)、キチマダニ(Haemaphysalis flava)、アメリカンドッグチック(Dermac entor variabilis) 、ヤマトマダニ(Ixodes ovatus)、シュルツマダニ(Ixodes persulcat us)、ブラックレッグドチック(Ixodes scapularis)、オウシマダニ(Boophilus microplu s)、ローンスターチック(Amblyomma americanum)、クリイロコイタマダニ(Rhipicephalus sanguineus)等のマダニ類、ケナガコナダニ (Tyrophagus putrescentiae) 等のコナダニ 類、コナヒョウヒダニ(Dermatophagoides farinae)、ヤケヒョウヒダニ(Dermatophagoide s ptrenyssnus)等のヒョウヒダニ類、ホソツメダニ(Cheyletus eruditus)、クワガタツメ ダニ(Cheyletus malaccensis)、ミナミツメダニ(Cheyletus moorei)等のツメダニ類、イ エダニ(Ornithonyssus bacoti)、トリサシダニ(Ornithonyssus sylvairum)、ワクモ(Derm anyssus gallinae)等のワクモ類、アオツツガムシ(Leptotrombidium akamushi)等のツツ ガムシ類等;

[0056]

クモ類:カバキコマチグモ (Chiracanthium japonicum) 、セアカゴケグモ (Latrodectus hasseltii) 等;

唇脚綱類:ゲジ (Thereuonema hilgendorfi) 、トビスムカデ (Scolopendra subspinipes) 等;

倍脚綱類:ヤケヤスデ (Oxidus gracilis) 、アカヤスデ (Nedyopus tambanus) 等;

等脚目類:オカダンゴムシ(Armadillidium vulgare)等;

腹足綱類:チャコウラナメクジ(Limax marginatus)、キイロコウラナメクジ(Limax fl

avus) 等;

線虫類:ミナミネグサレセンチュウ(Pratylenchus coffeae)、キタネグサレセンチュウ (Pratylenchus fallax)、ダイズシストセンチュウ(Heterodera glycines)、ジャガイ モシストセンチュウ (Globodera rostochiensis) 、キタネコブセンチュウ (Meloidogyne hapla)、サツマイモネコブセンチュウ (Meloidogyne incognita) 等。

[0057]

本発明の有害生物防除剤は本発明化合物そのものであってもよいが、一般的には、本発 明化合物と、固体担体、液体担体及び/又はガス状担体とを混合し、更に必要に応じて界 面活性剤その他の製剤用補助剤を添加して得られる製剤、並びに固体担体に本発明化合物 を担持させてなる製剤である。製剤としては、例えば乳剤、油剤、シャンプー剤、フロア ブル剤、粉剤、水和剤、粒剤、ペースト状製剤、マイクロカプセル製剤、泡沫剤、エアゾ ール製剤、炭酸ガス製剤、錠剤、樹脂製剤、紙製剤、不織布製剤、編織物製剤等の形態が あげられ、これらの製剤は、毒餌、殺虫線香、電気殺虫マット、燻煙剤、燻蒸剤、シート 等に加工されて、使用されることもある。

[0058]

本発明の有害生物防除剤は、本発明化合物を通常 0.01~98重量%含有する。 製剤化の際に用いられる固体担体としては、例えば粘土類(カオリンクレー、珪藻土、ベ ントナイト、フバサミクレー、酸性白土等)、合成含水酸化珪素、タルク、セラミック、 その他の無機鉱物 (セリサイト、石英、硫黄、活性炭、炭酸カルシウム、水和シリカ等) 、化学肥料(硫安、燐安、硝安、塩安、尿素等)等の微粉末及び粒状物、並びに羊毛、絹 、綿、麻、パルプ、合成樹脂(例えば、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン 、高密度ポリエチレン等のポリエチレン系樹脂;エチレン-酢酸ビニル共重合体等のエチ レンービニルエステル共重合体;エチレンーメタクリル酸メチル共重合体、エチレンーメ タクリル酸エチル共重合体等のエチレンーメタクリル酸エステル共重合体;エチレンーア クリル酸メチル共重合体、エチレンーアクリル酸エチル共重合体等のエチレンーアクリル 酸エステル共重合体;エチレンーアクリル酸共重合体等のエチレンービニルカルボン酸共 重合体;エチレンーテトラシクロドデセン共重合体;プロピレン単独重合体、プロピレン -エチレン共重合体等のポリプロピレン系樹脂;ポリ-4-メチルペンテン-1、ポリブ テンー1、ポリブタジエン、ポリスチレン;アクリロニトリルースチレン樹脂;アクリロ ニトリルーブタジエンースチレン樹脂、スチレンー共役ジエンブロック共重合体、スチレ ンー共役ジエンブロック共重合体水素添加物等のスチレン系エラストマー;フッ素樹脂; ポリメタクリル酸メチル等のアクリル系樹脂;ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド 系樹脂;ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンテレフ タレエート、ポリシクロヘキシレンジメチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂; ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリアクリルサルフォン、ポリアリレート、ヒドロ キシ安息香酸ポリエステル、ポリエーテルイミド、ポリエステルカーボネート、ポリフェ ニレンエーテル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリウレタン、発泡ポリウ レタン、発泡ポリプロピレン、発泡エチレン等の多孔質樹脂)、ガラス、金属、セラミッ ク等の1種または2種以上からなるフェルト、繊維、布、編物、シート、紙、糸、発泡体 、多孔質体及びマルチフィラメントが挙げられる。

[0059]

液体担体としては、例えば芳香族または脂肪族炭化水素類(キシレン、トルエン、アル キルナフタレン、フェニルキシリルエタン、ケロシン、軽油、ヘキサン、シクロヘキサン 等)、ハロゲン化炭化水素類(クロロベンゼン、ジクロロメタン、ジクロロエタン、トリ クロロエタン等)、アルコール類(メタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、 ブタノール、ヘキサノール、ベンジルアルコール、エチレングリコール等)、エーテル類 (ジエチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールモノ

メチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノ メチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン等)、エステル類(酢酸エチル、酢酸 ブチル等)、ケトン類(アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シク ロヘキサノン等)、ニトリル類(アセトニトリル、イソブチロニトリル等)、スルホキシ ド類(ジメチルスルホキシド等)、酸アミド類(N, N-ジメチルホルムアミド、N, N -ジメチルアセトアミド、N-メチル-ピロリドン等)、炭酸アルキリデン類(炭酸プロ ピレン等)、植物油(大豆油、綿実油等)、植物精油(オレンジ油、ヒソップ油、レモン 油等) および水などが挙げられる。

[0060]

ガス状担体としては、例えばブタンガス、フロンガス、液化石油ガス(LPG)、ジメ チルエーテル、炭酸ガス等を挙げることができる。

[0061]

界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、アルキルスルホン酸塩、アルキ ルアリールスルホン酸塩、アルキルアリールエーテル類及びそのポリオキシエチレン化物 、ポリエチレングリコールエーテル類、多価アルコールエステル類及び糖アルコール誘導 体が挙げられる。

[0062]

その他の製剤用補助剤としては、固着剤、分散剤及び安定剤等、具体的には例えばカゼ イン、ゼラチン、多糖類(澱粉、アラビアガム、セルロース誘導体、アルギン酸等)、リ グニン誘導体、ベントナイト、糖類、合成水溶性高分子(ポリビニルアルコール、ポリビ ニルピロリドン、ポリアクリル酸類等)、PAP(酸性リン酸イソプロピル)、BHT(2, 6-ジーt-ブチルー4-メチルフェノール)、BHA(2-t-ブチルー4-メト キシフェノールと3-t-ブチル-4-メトキシフェノールとの混合物)、植物油、鉱物 油、脂肪酸及び脂肪酸エステルが挙げられる。

[0063]

樹脂製剤の基材としては、例えば、低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、 高密度ポリエチレン等のポリエチレン系樹脂;エチレン-酢酸ビニル共重合体等のエチレ ンービニルエステル共重合体;エチレンーメタクリル酸メチル共重合体、エチレンーメタ クリル酸エチル共重合体等のエチレンーメタクリル酸エステル共重合体;エチレンーアク リル酸メチル共重合体、エチレンーアクリル酸エチル共重合体等のエチレンーアクリル酸 エステル共重合体;エチレン-アクリル酸共重合体等のエチレン-ビニルカルボン酸共重 合体;エチレンーテトラシクロドデセン共重合体;プロピレン共重合体、プロピレンーエ チレン共重合体等のポリプロピレン系樹脂;ポリー4-メチルペンテン-1、ポリブテン -1、ポリブタジエン、ポリスチレン、アクリロニトリルースチレン樹脂;アクリロニト リルーブタジエンースチレン樹脂、スチレン-共役ジエン共重合体、スチレン-共役ジエ ンブロック共重合体水素添加物等のスチレン系エラストマー;フッ素樹脂;ポリメタクリ ル酸メチル等のアクリル酸樹脂;ナイロン6、ナイロン66等のポリアミド系樹脂;ポリ エチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンブタレート、ポリシ クロヘキシレンジメチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂;ポリカーボネート、 ポリアセタール、ポリアクリルサルフォン、ポリアリレート、ヒドロキシ安息香酸ポリエ ステル、ポリエーテルイミド、ポリエステルカーボネート、ポリフェニレンエーテル樹脂 、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリウレタンが挙げられ、これらの基材は、単 独で用いても2種以上の混合物として用いても良く、これらの基材には必要によりフタル 酸エステル類(フタル酸ジメチル、フタル酸ジオクチル等)、アジピン酸エステル類、ス テアリン酸等の可塑剤が添加されていてもよい。樹脂製剤は該基材中に化合物を通常の混 練装置を用いて混練した後、射出成型、押出成型、プレス成型等により成型することによ り得られ、必要により更に成型、裁断等の工程を経て、板状、フィルム状、テープ状、網 状、ひも状等の樹脂製剤に加工できる。これらの樹脂製剤は、例えば動物用首輪、動物用 イヤータッグ、シート製剤、誘引ひも、園芸用支柱として加工される。

[0064]

毒餌の基材としては、例えば穀物粉、植物油、糖、結晶セルロース等が挙げられ、更に必要に応じて、ジブチルヒドロキシトルエン、ノルジヒドログアイアレチン酸等の酸化防止剤、デヒドロ酢酸等の保存料、トウガラシ末等の子供やペットによる誤食防止剤、チーズ香料、タマネギ香料ピーナッツオイル等の害虫誘引性香料等が添加される。

[0065]

本発明化合物の有効量を、有害生物に直接、及び/または有害生物の生息場所(植物体、動物体、土壌等)に施用することにより、有害生物を防除することができる。通常、本発明化合物として、本発明の有害生物防除剤の製剤を使用する。

[0066]

本発明の有害生物防除剤を農林害虫の防除に用いる場合は、その施用量は有効成分量として通常 $1\sim100000$ g / h a である。乳剤、水和剤、フロアブル剤、マイクロカプセル製剤等は通常有効成分濃度が $0.01\sim1000$ p p m となるように水で希釈して使用し、油剤、粉剤、粒剤等は通常そのまま使用する。これらの製剤を有害生物から保護すべき植物に対して直接散布してもよい。これらの製剤を土壌に処理することにより土壌に棲息する有害生物を防除することもでき、またこれらの製剤を植物を植え付ける前の苗床に処理したり、植付時に植穴や株元に処理することもできる。さらに、本発明の有害生物防除剤のシート製剤を植物に巻き付けたり、植物の近傍に設置したり、株元の土壌表面に敷くなどの方法でも施用することができる。

[0067]

本発明の有害生物防除剤を防疫用として用いる場合は、その施用量は空間に適用するときは有効成分量として通常 $0.001\sim100\,\mathrm{mg/m^3}$ であり、平面に適用するときは $0.001\sim100\,\mathrm{mg/m^2}$ である。乳剤、水和剤、フロアブル剤等は通常有効成分 濃度が $0.001\sim10000\,\mathrm{ng/m^2}$ である。乳剤、水和剤、フロアブル剤等は通常有効成分 濃度が $0.001\sim10000\,\mathrm{ng/m^2}$ であるように水で希釈して施用し、油剤、エアゾール、燻煙剤、毒餌等は通常そのまま施用し、殺虫線香、電気殺虫マット等は形態に応じて加熱により有効成分を揮散させて施用し、樹脂製剤、紙製剤、不織布製剤、編織物製剤、シート製剤等は通常施用する空間に放置するもしくはファン等を用いて本発明の有害生物防除剤に送風することにより、常温付近で有効成分を揮散させて施用する。

[0068]

本発明の有害生物防除剤をウシ、ウマ、ブタ、ヒツジ、ヤギ、ニワトリ用の家畜、イヌ、ネコ、ラット、マウス等の小動物の外部寄生虫防除に用いる場合は、獣医学的に公知の方法で動物に使用することができる。具体的な使用方法としては、全身抑制(systemic control)を目的にする場合には、例えば錠剤、飼料混入、坐薬、注射(筋肉内、皮下、静脈内、腹腔内等)により投与され、非全身的抑制(non-systemic control)を目的とする場合には、例えば油剤若しくは水性液剤を噴霧する、ポアオン(pour-on)処理若しくはスポットオン(spot-on)処理する、シャンプー製剤で動物を洗う又は樹脂製剤を首輪や耳札にして動物に付ける等の方法により用いられる。動物体に投与する場合の本発明化合物の量は、通常動物の体重1kgに対して、0.01~1000mgの範囲である。

[0069]

本発明の有害生物防除剤は他の殺虫剤、殺線虫剤、殺ダニ剤、殺菌剤、除草剤、植物生長調節剤、共力剤、肥料、土壌改良剤、動物用飼料等と混用又は併用することもできる。

[0070]

かかる他の殺虫剤、殺ダニ剤の有効成分としては、例えば、アレスリン、テトラメトリン、プラレトリン、フェノトリン、レスメトリン、シフェノトリン、ペルメトリン、シペルメトリン、アルファシペルメトリン、ゼータシペルメトリン、デルタメトリン、トラロメトリン、シフルトリン、ベータシフルトリン、シハロトリン、ラムダシハロトリン、フラメトリン、イミプロトリン、エトフェンプロクス、フェンバレレート、エスフェンバレレート、フェンプロパトリン、シラフルオフェン、ビフェントリン、トランスフルスリン、フルシトリネート、タウフルバリネート、アクリナトリン、テフルトリン、シクロプロトリン、メトフルトリン、ジメフルトリン、プロフルトリン、エンペンスリン等のピレスロイド化合物、ジクロルボス、フェニトロチオン、シアノホス、プロフェノホス、スルプ

ロホス、フェントエート、イソキサチオン、テトラクロロビンホス、フェンチオン、クロ ルピリホス、ダイアジノン、アセフェート、テルブホス、フォレート、クロルエトキシホ ス、ホスチアゼート、エトプロホス、カズサホス、メチダチオン等の有機燐化合物、プロ ポキサー、カルバリル、メトキサジアゾン、フェノブカルブ、メソミル、チオジカルブ、 アラニカルブ、ベンフラカルブ、オキサミル、アルジカルブ、メチオカルブ等のカーバメ ート化合物、ルフェヌロン、クロルフルアズロン、ヘキサフルムロン、ジフルベンズロン 、トリフルムロン、テフルベンズロン、フルフェノクスロン、フルアズロン、ノバルロン 、トリアズロン、ビストリフルロン等のベンゾイルフェニルウレア化合物、ピリプロキシ フェン、メトプレン、ハイドロプレン、フェノキシカルブ等の幼若ホルモン様物質、アセ タミプリド、ニテンピラム、チアクロプリド、チアメトキサム、ジノテフラン等のネオニ コチノイド系化合物、アセトプロール、エチプロール等のN-フェニルピラゾール系化合物 、テブフェノジド、クロマフェノジド、メトキシフェノジド、ハロフェノジド等のベンゾ イルヒドラジン化合物、ジアフェンチウロン、ピメトロジン、フロニカミド、トリアザメ ート、ブプロフェジン、スピノサド、エマメクチン安息香酸塩、クロルフェナピル、イン ドキサカルブMP、ピリダリル、シロマジン、フェンピロキシメート、テブフェンピラド、 トルフェンピラド、ピリダベン、ピリミジフェン、フルアクリピリム、エトキサゾール、 フェナザキン、アセキノシル、ヘキシチアゾクス、クロフェンテジン、酸化フェンブタス ズ、ジコホル、プロパルギット、エバーメクチン、ミルベメクチン、アミトラズ、カルタ ップ、ベンスルタップ、チオシクラム、エンドスルファン、スピロジクロフェン、スピロ メシフェン、アミドフルメト及びアザジラクチンがあげられる。

$[0\ 0\ 7\ 1]$

かかる他の殺菌剤の有効成分としては、例えば、アゾキシストロビン等のストロビルリ ン化合物、トリクロホスメチル等の有機リン化合物、メトコナゾール、ヘキサコナゾール 、イプコナゾール、シプコナゾール、トリフルミゾール、ペフラゾエート、ジフェノコナ ゾール等のアゾール化合物、IPBC等のヨードプロパルギル化合物、OIT、MEC等のイソチア ゾロン化合物、フサライド、フルトラニル、バリダマイシン、プロベナゾール、ジクロメ ジン、ペンシクロン、ダゾメット、カスガマイシン、IBP、ピロキロン、オキソリニック 酸、トリシクラゾール、フェリムゾン、メプロニル、EDDP、イソプロチオラン、カルプロ パミド、ジクロシメット、フラメトピル、フルジオキソニル、プロシミドン及びジエトフ エンカルブがあげられる。

【実施例】

[0072]

以下、本発明を製造例、製剤例および試験例によりさらに詳しく説明するが、本発明は 、これらの例のみに限定されるものではない。

まず、本発明化合物の製造例を示す。

[0073]

製造例1

- 水素化ナトリウム (60%油性) 0.5 gをN, N ジメチルホルムアミド <math>1(1)0 m 1 に懸濁し、約0℃で(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル1.6 $g \in N$, $N - \mathcal{I}$ \mathcal{I} \mathcal{I} 温してからN、N-ジメチルホルムアミドを加え、全量を20mlとした。(このように して得られた溶液を以下溶液Aと記す。)
- 1-ブロモー3-クロロプロパンO. 23gをN, N-ジメチルホルムアミド 1mlに溶解し、ここに溶液A 2mlを加え、室温で4時間撹拌した。その後、反応混 合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無 水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグ ラフィーに付して、 $2-(3-\rho ロロプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロ$ ピル) マロノニトリル (以下、本発明化合物 (1) と記す。) 0.13gを得た。

本発明化合物(1)

 1 H - NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 13 \sim 2. 21 (6 H, m), 2

. $42 \sim 2$. 53 (2 H, m), 3.62 (2 H, t)

[0074]

製造例2

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-3-クロロ-2-メチルプロ パン 0. 17 gを用い、製造例 1 (2) に準じて、2 - (3 - クロロー 2 - メチルプロピ ル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物 (2) と記す。) 0. 11gを得た。

本発明化合物(2)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) :1. 26 (3H, d),1. 84 \sim 1 . 9 2 (1 H, m), 2. 2 1 \sim 2. 3 8 (4 H, m), 2. 4 3 \sim 2. 5 7 (2 H, m), 3. $43 \sim 3$. 68 (2 H, m)

[0075]

製造例3

1-ブロモー3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモー4-クロロブタン0.17g を用い、製造例1 (2) に準じて、2- (4-クロロブチル) -2- (3, 3, 3-トリ フルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(3)と記す。)0.17gを 得た。

本発明化合物(3)

 $^{1}\,\text{H}-\text{NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) :1. 82 \sim 1. 94 (4 H, m) , 1 . 9 6 \sim 2. 0 6 (2 H, m) , 2. 1 3 \sim 2. 2 1 (2 H, m) , 2. 4 1 \sim 2. 5 3 (2 H, m), 2.54(2 H, t)

[0076]

製造例4

1-ブロモー3-クロロプロパンの代わりに2-ブロモメチルー1, 1-ジクロロシク ロプロパン 0. 2 1 gを用い、製造例 1 (2) に準じて、2-(2, 2-ジクロロシクロ プロピルメチル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、 本発明化合物(4)と記す。) 0.12gを得た。

本発明化合物(4)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) :1.42 (1H, t),1.81 ~ 1 . 96 (2 H, m), 2. 08 \sim 2. 12 (1 H, m), 2. 22 \sim 2. 29 (2 H, m) $2.43 \sim 2.58 (3 H, m)$

[0077]

製造例 5

マロノニトリル2. 00gおよび1-ブロモー3,3,3-トリフルオロプロパン13 . 0gをN, N-ジメチルホルムアミド10mlに溶解させ、氷浴で冷却した。ここへ炭 酸カリウム8.4gをゆっくりと添加後、そのまま室温まで昇温しながら30時間撹拌し た。反応液に氷水および酢酸エチルを加えて撹拌後分液し、水層を酢酸エチルで抽出した 。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃 縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2、2-ビス(3,3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(5)と記す。)4. 75gを得た。

本発明化合物(5)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 26 \sim 2. 33 (4 H, m), 2. $52 \sim 2$. 61 (4 H, m)

[0078]

製造例6

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりにヨードエタン 0.16gを用い、製造例 1 (2) に準じて、2-エチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリ ル (以下、本発明化合物 (6) と記す。) 0.03gを得た。

本発明化合物(6)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 1. 32 (3H, t), 2. 06 (2 H, q), 2. 14 \sim 2. 22 (2H, m), 2. 42 \sim 2. 57 (2H, m) [0079]

製造例7

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードプロパン0.17gを用い、製 造例1(2)に準じて、2-プロピル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロ ノニトリル(以下、本発明化合物(7)と記す。)0.05gを得た。

本発明化合物(7)

 1 H - NMR (CDC13, TMS) δ (ppm) : 1. 08 (3H, t), 1. 68 \sim 1 . 77 (2 H, m), 1. 91 \sim 1. 96 (2 H, m), 2. 13 \sim 2. 21 (2 H, m), 2. $43 \sim 2$. 57 (2 H, m)

[0080]

製造例8

1-ブロモー3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードブタン0.18gを用い、製造 例1(2)に準じて、2-ブチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニ トリル (以下、本発明化合物 (8) と記す。) 0. 11gを得た。

本発明化合物(8)

 1 H-NMR (CDC13, TMS) δ (ppm) : 0. 98 (3H, t), 1. 46 (2 H, q), 1. 63 \sim 1. 72 (2H, m), 1. 94 \sim 2. 03 (2H, m), 2. 1 $8 \sim 2$. 2 3 (2 H, m) , 2 . 4 3 \sim 2 . 5 5 (2 H, m)

[0081]

製造例 9

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードペンタン0.20gを用い、製 造例1(2)に準じて、2-ペンチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロ ノニトリル(以下、本発明化合物(9)と記す。) 0. 10gを得た。

本発明化合物(9)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) :0. 91 $\sim\!1$. 02 (3 H, m) ,1 . $38 \sim 1$. 45 (4 H, m) , 1. $61 \sim 1$. 74 (2 H, m) , 1. $93 \sim 2$. 07(2 H, m) , 2. $1 \text{ 3} \sim 2$. 2 4 (2 H, m) , 2. $4 \text{ 7} \sim 2$. 5 4 (2 H, m)

[0082]

製造例10

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードヘキサン0.21gを用い、製 造例1(2)に準じて、2-ヘキシル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロ ノニトリル (以下、本発明化合物 (10) と記す。) 0. 13 gを得た。

本発明化合物(10)

 1 H - NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 0. 87 (3H, t), 1. 28 \sim 1 . 43 (6 H, m), 1. 63~1. 72 (2 H, m), 1. 91~2. 01 (2 H, m) 、 2. 1 3 \sim 2. 1 9 (2 H, m) 、 2. 4 2 \sim 2. 5 1 (2 H, m)

[0083]

製造例11

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードヘプタン0.23gを用い、製 造例1(2)に準じて、2-ヘプチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロ ノニトリル (以下、本発明化合物 (11) と記す。) 0.10gを得た。

本発明化合物(11) 1 H - NMR (CDC 1 3, TMS) δ (ppm) : 0. 90 (3 H, t), 2. 2 1 \sim 2. 4 2 (8 H, m), 2. 5 9 \sim 2. 6 8 (2 H, m), 1. 9 1 \sim 2. 0 2 (2 H, m) 、 2. 1 2 \sim 2. 2 8 (2 H, m) 、 2. 4 1 \sim 2. 5 3 (2 H, m)

[0084]

製造例12

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ヨードオクタン0.24gを用い、製 出証特2004-3101437 造例1(2)に準じて、2-オクチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロ ノニトリル (以下、本発明化合物(12) と記す。) 0.17gを得た。

本発明化合物(12)

 1 H - NMR (CDC $_{13}$, TMS) δ (ppm) : 0.89 (3H, t), 1.21 \sim 1 . 4 2 (1 0 H, m) , 1. 6 3 \sim 1. 7 1 (2 H, m) , 1. 9 2 \sim 1. 9 7 (2 H, m) , 2. $13 \sim 2$. 19 (2 H, m) , 2. $41 \sim 2$. 58 (2 H, m)

[0085]

製造例13

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモノナン0.21gを用い、製造 例1(2)に準じて、2-ノニル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニ トリル (以下、本発明化合物 (13) と記す。) 0. 19gを得た。

本発明化合物(13)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 0.89 (3H, t), 1.21 \sim 1 . 48 (12 H, m), 1. 68 \sim 1. 77 (2 H, m), 1. 96 \sim 2. 03 (2 H, m) 、 2. 19 \sim 2. 23 (2 H, m) 、 2. 43 \sim 2. 61 (2 H, m)

[0086]

製造例14

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモデカン0.22gを用い、製造 例1(2)に準じて、2-デシル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニ トリル (以下、本発明化合物 (14) と記す。) 0.15gを得た。

本発明化合物(14)

 $^{1}\,H-N\,M\,R$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) :0.89 (3H,t),1.22~1 . 48 (14H, m), 1. 68~1. 74 (2H, m), 1. 97~2. 01 (2H, m) , 2. 18 \sim 2. 22 (2 H, m) , 2. 48 \sim 2. 63 (2 H, m)

[0087]

製造例 15

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりにアリルブロマイド 0. 12 gを用い、製造 例 1 (2) に準じて、2-アリルー2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニ トリル (以下、本発明化合物 (15) と記す。) 0.12gを得た。

本発明化合物(15)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) : 2. 12 \sim 2. 21 (2H, m) , 2 . $43 \sim 2$. 58 (2 H, m), 2. 75 (2 H, d), 5. $43 \sim 5$. 51 (2 H, m), 5. $84 \sim 5$. 95 (1 H, m)

[0088]

製造例 1 6

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-3-ブテン0.14gを用い 、製造例 1 (2) に準じて、2-(3-ブテニル)-2-(3,3,3-トリフルオロプ ロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(16)と記す。)0.13gを得た。

本発明化合物(16) $^{1}\,\text{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 06 \sim 2. 10 (2H, m) , 2 . 2 1 \sim 2 . 2 4 (2 H, m) , 2 . 4 5 \sim 2 . 5 8 (4 H, m) , 5 . 1 4 \sim 5 . 2 3 (2 H, m), 5.81 \sim 5.85 (1 H, m)

[0089]

製造例 1 7

1-ブロモー3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモー3,4,4-トリフルオロー 3-ブテン0. 19gを用い、製造例1(2)に準じて、2-(3,3,4-トリフルオ ロー3ーブテニル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下 、本発明化合物(17)と記す。)0. 19gを得た。

本発明化合物(17)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl3, TMS) δ (ppm) : 2. 23 \sim 2. 27 (4 H, m), 2 出証特2004-3101437 . $52 \sim 2$. 61 (2 H, m), $2.69 \sim 2.80 (2 H, m)$

[0090]

製造例18

ジメチルスルホキシド5 m l に 2-(3,3,3-1) リル 1-1 は 1-1 は

本発明化合物(18)

 1 H-NMR (CDC 1 3, TMS) δ (ppm) : 0. 40 (2 H, dd) , 0. 72 (2 H, dd) , 0. 91 \sim 0. 98 (1 H, m) , 1. 95 (2 H, d) 2. 16 \sim 2. 23 (2 H, m) , 2. 43 \sim 2. 52 (2 H, m)

[0091]

製造例19

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりにシクロブチルメチルブロマイド 0. 44gを用い、製造例 18に準じて、2ーシクロブチルメチルー2ー(3,3,3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(19)と記す。)0.34gを得た

本発明化合物(19)

 1 H-NMR (CDC 1 3, TMS) δ (ppm) : 1. 8 1~1. 9 2 (2 H, m), 1 . 9 3~2. 0 1 (2 H, m), 2. 0 6 (2 H, d), 2. 1 1~2. 1 9 (2 H, m), 2. 2 2~2. 2 7 (2 H, m), 2. 4 1~2. 5 2 (2 H, m), 2. 6 1~2. 6 9 (1 H, m)

[0092]

製造例 2 0

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 2 、 2 、 3 、 3 ーテトラフルオロプロピルトリフルオロメタンスルホン酸エステル 0 . 4 4 gを用い、製造例 1 8 に準じて、 2 ー (2 、 2 、 3 、 3 ーテトラフルオロプロピル) -2 ー (3 、 3 、 3 ートリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物(2 0)と記す。) 0 . 3 4 gを得た。

本発明化合物 (20)

¹H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2.34~2.41 (2H、m)、2.55~2.63 (2H、m)、2.74 (2H、t)、5.88 (1H、tt)

[0093]

製浩例 2 1

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 2ートリフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1. 2 gを用い、製造例 18 に準じて、2-(2, 2, 2-1) フルオロエチル)-2-(3, 3, 3-1) フルオロプロピル)マロノニトリル (以下、本発明化合物(21)と記す。) 0. 2 gを得た。

本発明化合物(21)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC $l_{\,3},\ TMS)$ δ (ppm) : 2. $3\,0\!\sim\!2$. $3\,8$ (2 H, m) , 2. $5\,1\!\sim\!2$. $6\,9$ (2 H, m) , 2. $8\,7$ (2 H, q)

[0094]

製造例 2 2

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 3, 3, 3ーペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1.3gを用い、製造例18に準じて、2ー(2, 2, 3, 3, 3ーペンタフルオロプロピル)ー2ー(3, 3, 3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(22)と記す。)0.2gを得た。本発明化合物(22)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 35~2. 41 (2H, m) , 2 . 57~2. 67 (2H, m) , 2. 81 (2H, t)

[0095]

製造例 2 3

本発明化合物(23)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 36~2. 40 (2H, m), 2. 57~2. 68 (2H, m), 2. 81~2. 91 (2H, m), 4. 85~5. 03 (1H, m)

[0096]

製造例 2 4

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4ーヘプタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル15 gを用い、製造例18 に準じて、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4-ヘプタフルオロブチル)<math>-2-(3, 3, 3-1) トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(24)と記す。)2.0 gを得た。

本発明化合物(24)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 3 $7\!\sim\!2$, 4 1 (2 H, m) , 2 . 5 $8\!\sim\!2$. 8 0 (2 H, m) , 2. 8 6 (2 H, t)

[0097]

製造例 2 5

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2-フルオロエチル)トルエンスルホン酸エステル 2. 2 gを用い、製造例 1 8 に準じて、2-(2-フルオロエチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(2 5)と記す。) 0. 4 gを得た。

本発明化合物(25)

 1 H - NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 29 \sim 2. 34 (2 H, m), 2. 40 \sim 2. 42 (2 H, m), 2. 46 \sim 2. 59 (2 H, m), 4. 82 (2 H, dt) [0098]

製造例 2 6

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1 H、1 H、2 H、2 H ーパーフルオロオクチルヨージド4. 7 gを用い、製造例 1 8 に準じて、2 ー(1 H、1 H、2 H、2 H ーパーフルオロオクチル)-2 ー(3, 3, 3 ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(2 6)と記す。)0. 6 gを得た。

本発明化合物(26)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 27~2. 35 (4 H, m) , 2 . 47~2. 61 (4 H, m)

[0099]

製造例 2 7

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに3-ブロモー1-プロピン1.2gを用い、製造例18に準じて、2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)-2-(2-プロピニル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(27)と記す。)0.94gを得た。本発明化合物(27)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2.34~2.39 (2H, m), 2.44~2.57 (3H, m), 3.00 (2H, s)

[0100]

製造例 2 8

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(ブロモメチル)シクロプロパン1.8gを用い、製造例18に準じて、2-シクロヘキシルメチル-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(28)と記す。)0.64gを得た。

本発明化合物(28)

 1 H-NMR (CDC $_{13}$, TMS) δ (ppm) : 1. $14\sim1$. 71 (5 H, m), 1. $80\sim1$. 98 (4 H, m), 2. $06\sim2$. 11 (2 H, m), 2. $21\sim2$. 28 (2 H, m)

[0101]

製造例 2 9

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに3、3、4、4、4ーペンタフルオロブチルヨージド2.8 gを用い、製造例18に準じて、2ー(3、3、4、4、4ーペンタフルオロブチル)ー2ー(3,3,3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(29)と記す。)1.8 gを得た。

本発明化合物(29)

 $^{1}\,H-N\,M\,R$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 12~2. 20 (4 H, m) , 2 . 23~2. 59 (4 H, m)

[0102]

製造例30

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1-ブロモ-2-クロロ-4-ヨード-1、1、2-トリフルオロブタン2. 8 gを用い、製造例1 8に準じて、2-(4-ブロモ-3-クロロ-3、4、4-トリフルオロブチル) -2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物(30)と記す。) 0. 8 9 gを得た。本発明化合物(30)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 30~2. 65 (7H, m), 2. 74~2. 83 (1H, m)

[0103]

製造例31

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5ーオクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1. 6 gを用い、製造例 1 8 に準じて、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(31)と記す。) <math>0. 5 4 gを得た。

本発明化合物(31)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. $36\sim2$. 41 (2H, m) 2. $57\sim2$. 65 (2H, m), 2. 84 (2H, t), 6. 07 (1H, tt)

[0104]

製造例32

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7ードデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1. 6 g を用い、製造例 18 に準じて、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)<math>-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(32)と記す。) 0. 70 gを得た。

本発明化合物(32)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. $36\sim2$. 41 (2H, m), 2. $58\sim2$. 65 (2H, m), 2. 84 (2H, t), 6. 06 (1H, tt)

[0105]

製造例33

ド3. 2gを用い、製造例18に準じて、2 - ((2 - パーフルオロデシル)エチル) - 2 - (3,3,3 - トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(33)と記す。)2.0gを得た。

本発明化合物(33)

 $^{1}H-NMR$ (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 66~2. 80 (4H, m), 3. 23~3. 29 (4H, m)

[0106]

製造例34

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに 2-(パーフルオロオクチル) エチルヨージド 2. 4 gを用い、製造例 1 8 に準じて、 2-((2-パーフルオロオクチル) エチル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物(3 4)と記す。) 0. 1 gを得た。

本発明化合物(34)

 $^{1}\,H-N\,M\,R$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 27 \sim 2. 35 (4 H, m) , 2 . 45 \sim 2. 58 (4 H, m)

[0107]

製造例35

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1-プロモー4-ヨードー1, 1, 2, 2-テトラフルオロブタン1. 7gを用い、製造例18に準じて、2-(4-プロモー3, 3, 4, 4-テトラフルオロブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(35)と記す。)0. 53 gを得た。

本発明化合物(35)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 26~2. 36 (4H, m), 2. 47~2. 61 (4H, m)

[0108]

製造例36

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに4-3-k-1, 1, 1, 2-rトラフルオロ-2-(トリフルオロメチル)ブタン1. 7 gを用い、製造例 1 8 に準じて、2-(2, 4, 4, 4-rトラフルオロ-3-(トリフルオロメチル)ブチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(3 6)と記す。) 0. 5 3 gを得た。

本発明化合物(36)

 $^{1}H-NMR$ (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 23~2. 32 (4H, m), 2. 47~2. 61 (4H, m)

[0109]

製造例 3 7

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに5-ヨード-1, 1, 1, 2, 2, 3, 3 -ヘプタフルオロペンタン1. 6 gを用い、製造例1 8 に準じて、2-(3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ヘプタフルオロペンチル)-2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(37)と記す。)0. 23 gを得た。

本発明化合物(37)

 $^{1}\,H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 28~2. 35 (4 H, m) , 2 . 48~2. 61 (4 H, m)

 $[0\ 1\ 1\ 0\]$

製造例38

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1H、1H、2H、2H-パーフルオロヘキシルヨージド2. 1 gを用い、製造例1 8 に準じて、2-(3,3,4,4,5,5,6,6-ノナフルオロヘキシル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル) マロノニトリル(以下、本発明化合物(38)と記す。)0.64 gを得た。

本発明化合物(38)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) : 2. 26~2. 35 (4H, m) , 2 $.50 \sim 2.62 (4 H, m)$

[0111]

製造例39

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに3-フルオロプロピルブロマイド1. 4 g を用い、製造例18に準じて、2-(3-フルオロプロピル)-2-(3,3,3-トリ フルオロプロピル)マロノニトリル

(以下、本発明化合物(39)と記す。)0.62gを得た。

本発明化合物(39)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) : 2. 05~2.11 (2H, m) , 2 . 13 \sim 2. 19 (2H, m), 2. 20 \sim 2. 28 (2H, m), 3. 49 \sim 2. 59 (2 H, m), 4. 57 (2 H, dt)

[0112]

製造例40

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1,2-ジブロモエタン5.6gを用い、 製造例18に準じて、2-(2-)ロモエチル)-2-(3,3,3-)リフルオロプロ ピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(40)と記す。)2.3gを得た。

本発明化合物(40)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) : 2. 23 \sim 2. 30 (2 H, m) , 2 $49 \sim 2.58 (4 H, m), 3.59 (2 H, t)$

[0113]

製造例 4 1

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1,3-ジブロモプロパン5.6gを用い 、製造例18に準じて、2-(3-ブロモプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロ プロピル)マロノニトリル (以下、本発明化合物 (41) と記す。) 2.3 gを得た。 本発明化合物(41)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 16 \sim 2. 30 (6 H, m) , 2 . $4.7 \sim 2.59$ (2 H, m), 3.51 (2 H, t)

$[0\ 1\ 1\ 4\]$

製造例 4 2

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに5-ブロモー1-ペンテン7.2gを用い 、製造例18に準じて、2-(4-ペンテニル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロ ピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(42)と記す。)6.0gを得た。 本発明化合物(42)

 1 H-NMR (CDCl₃, TMS) δ (ppm) : 1. $7.8 \sim 1$. 8.5 (2H, m), 1 . 9 7 \sim 2. 0 1 (2 H, m), 2. 1 8 \sim 2. 2 3 (4 H, m), 2. 4 6 \sim 2. 5 7 (2 H, m), 5. 06 \sim 5. 12 (2 H, m), 5. 72 \sim 5. 82 (1 H, m)

[0115]製造例 4 3

2-(2, 2-ジメチルプロピル) マロノニトリル400mgをN, N-ジメチルホル ムアミド5m1に溶解させ、氷浴で冷却した。ここへ水素化ナトリウム(60%油性)1 20mgをゆっくりと添加した。水素ガスの発生がおさまった後、1-ブロモー3,3, 3-トリフルオロプロパン750mgをゆっくりと滴下し、そのまま室温まで昇温しなが ら12時間撹拌した。反応液に氷水および酢酸エチルを加えて撹拌後分液し、水層を酢酸 エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥 した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(2, 2-ジメチルプロピル) -2-(3, 3, 3-トリフルオロプロピル) マロノニトリ ル (以下、本発明化合物(43)と記す。) 437mgを得た。

本発明化合物(43) $^{1}H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 1. 21 (9H, s), 1. 92 (2 H, s), 2. $19 \sim 2$. 23 (2 H, m), 2. $49 \sim 2$. 61 (2 H, m)[0116]

製造例44

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに3-ブロモ-2-メチルプロペン0.12 gを用い、製造例 1 (2) に準じて、2-(2-メチル-2-プロペニル) -2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(44)と記す。) 0.20gを得た。

本発明化合物(44)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDCl₃, TMS) δ (ppm) :1. 97 (3H, s), 2. 19 \sim 2 . 24 (2 H, m), 2. 48 \sim 2. 60 (2 H, m), 2. 71 (2 H, s), 5. 1 6 (2 H, d)

[0117]

製造例 4 5

1-ブロモ-3-クロロプロパンの代わりに1-ブロモ-2-メチルプロパン0.14 gを用い、製造例 1 (2) に準じて、2-(2-メチルプロピル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(45)と記す。)0.1 6 gを得た。

本発明化合物(45)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 1. 17 (6 H, d), 1. 89 (2 H, d), 2. $0.8 \sim 2$. 1.8 (1 H, m), 2. $1.9 \sim 2$. 2.3 (2 H, m), 2. 4 $7 \sim 2.62 (2 \text{ H}, \text{m})$

[0118]

製造例 4 6

ジメチルスルホキシド10mlに2-(2,2,3,4,4,4-ヘキサフルオロブチ ル)マロノニトリル1.2g及び2-クロロ-1,4-ジブロモ-1,1,2-トリフル オロブタン1.5gを溶解し、炭酸カリウム0.7gを加えて室温で5時間撹拌した。そ の後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順 次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラ ムクロマトグラフィーに付して、2-(4-ブロモ-3-クロロ-3,4,4-トリフル オロブチル) -2-(2,2,3、4,4,4-ヘキサフルオロブチル) マロノニトリル (以下、本発明化合物(46)と記す。)0.14gを得た。

本発明化合物(46)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 39 \sim 2. 93 (6 H, m) , 4 $.86 \sim 5.02 (1 H, m)$

[0119]

製造例 4 7

ジメチルスルホキシド5m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオ ロペンチル) マロノニトリル 0. 56 g及びアリルブロマイド 0. 30 gを溶解し、炭酸 カリウム 0. 28 gを加えて室温で5時間撹拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え 、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウム で乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、 2-(アリル)-2-(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル<math>)マ ロノニトリル (以下、本発明化合物 (47) と記す。) 0.15gを得た。

本発明化合物(47)

 $^{1}\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 75 (2H, t), 2. 87 (2 H, d), 5. 47~5. 72 (2H, m), 5. 86~6. 21 (2H, m)

[0120]

製造例 4 8

シクロプロピルメチルブロマイドの代わりに1-ヨード-4, 4, 4-トリフルオロブ タン1.2gを用い、製造例18に準じて、2-(4,4,4-トリフルオロブチル)-

出証特2004-3101437

2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(48)と記す。) 1.0 gを得た。

本発明化合物(48)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 00~2. 11 (4H, m), 2. 21~2. 32 (4H, m), 2. 48~2. 59 (2H, m)

[0121]

製造例 4 9

ジメチルスルホキシド30mlに(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル14.6 gを溶解し、炭酸カリウム5.5 gを加えた。さらに、ジメチルスルホキシド10mlに溶解したマロノニトリル2.6 gをゆっくりと滴下し、室温で3時間撹拌した。さらに(2,2,3,3,4,4,5,5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル7.0 g、炭酸カリウム2.7 gを加え、1時間撹拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付した。得られた留分を濃縮、クロロホルムで洗浄し、2,2-ビス(2,2,3,3,4,4,5,5-4クタフルオロペンチル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(49)と記す。)0.13 gを得た。

本発明化合物(49)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 3. 00 (4H, t), 6. 07 (2H, tt)

[0122]

製造例 5 0

N, N-ジメチルホルムアミド50mlにマロノニトリル7.5gを溶解し、炭酸カリウム10.4gを加えた。室温で1時間撹拌し、N, N-ジメチルホルムアミド20mlに溶解した(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル10.0gをゆっくりと滴下し、一晩撹拌した。その後、反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付した。得られた留分をクロロホルムで洗浄し、2, 2-ビス(2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(50)と記す。)0.08gを得た。

本発明化合物(50)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 89 (4H, t), 5. 88 (2H, tt)

[0123]

製造例 5 1

ジメチルスルホキシド10m1に2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) マロノニトリル1.4g及びヨードペンタン1.0gを溶解し、炭酸カリウム0.70gを加えて室温で3時間撹拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、酢酸エチルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付して、2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル) - 2-ペンチルマロノニトリル(以下、本発明化合物(<math>51)と記す。)0.90gを得た。

本発明化合物(51)

 $^{1}H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 0. 94 (3 H, t), 1. 3 $7\!\sim\!1$. 45 (4 H, m), 1. 7 $1\!\sim\!1$. 79 (2 H, m), 2. 0 $7\!\sim\!2$. 11 (2 H, m), 2. 76 (2 H, t), 6. 06 (1 H, t t)

[0124]

製造例 5 2

ジメチルスルホキシド40m1に3,3,3ートリフルオロマロノニトリル3.2 g、ジブロモメタン7.0 g、炭酸カリウム5.5 gを加え、室温で18時間撹拌した。その後、反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸ナトリウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2ーブロモメチルー2ー(3,3,3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(52)と記す。)3.4 gを得た。

本発明化合物 (52)
¹H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm): 2.32~2.38 (2H、m)、2.50~2.59 (2H、m)、3.72 (2H、s)

[0125]

製造例 5 3

N, N-ジメチルホルムアミド10m1に2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル2.0g及び(2,2,3,3,4,4,5,5,5-ノナフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル4.7gを溶解し、炭酸カリウム2.0gを加え、60℃で4時間撹拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、t-ブチルメチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5,5,5-ノナフルオロペンチル)-2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(53)と記す。)0.87gを得た。

本発明化合物(53)

 $^{1}\text{H}-\text{NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 36 \sim 2, 41 (2H, m) , 2. 56 \sim 2. 67 (2H, m) , 2. 84 (2H, t)

[0126]

製造例 5 4

ジメチルスルホキシド5m1に2ー(3,3,3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル1.6 g及び1,2ージクロロー4ーヨードー1,1,2ートリフルオロブタン3.1 gを溶解し、炭酸カリウム1.4 gを、室温で6時間撹拌した。その後、反応混合物に希塩酸を加え、t-ブチルメチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2ー(3,4-ジクロロー3,4,4ートリフルオロブチル)ー2ー(3,3,3ートリフルオロプロピル)マロノニトリル(以下、本発明化合物(54)と記す。)1.9 gを得た。

本発明化合物(54)

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 28~2. 61 (7H, m) , 2 . 71~2. 80 (1H, m)

[0127]

以下、本発明の化合物を具体的に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。 .【0128】

式(I)で示される化合物;

なお、式中のR及びQの組合せを(表1)~(表3)に示す。

[0129]

【表1】

化合物番号	R	Q
1	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ Cl
2	CH ₂ CF ₃	CH (CH ₃) CH ₂ C1
3	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ Cl
4	CH ₂ CF ₃	CC12
		CH
	,	CH ₂
5	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₃
6	CH ₂ CF ₃	CH ₃
7	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₃
8	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₃
9	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃
10	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃
11	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃
12	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₂ CH ₃
13	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₃
14	CH ₂ CF ₃	CH ₂
15	CH ₂ CF ₃	CH=CH ₂
16	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH=CH ₂
17	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF=CF ₂
18	CH ₂ CF ₃	CH₂
		CH
		ĊH ₂
19	CH ₂ CF ₃	CH ₂
		CH CH2
		CH ₂
20	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CHF ₂
21	CH ₂ CF ₃	CF ₃
22	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CF ₃
23	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CHFCF ₃
24	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CF ₂ CF ₃
25	CH ₂ CF ₃	CH ₂ F

[0130]

【表2】

化合物番号	R	Q
26	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₃
27	CH ₂ CF ₃	$C \equiv CH$
28	CH ₂ CF ₃	CH ₂ -CH ₂
		CH CH2
		CH ₂ -CH ₂
29	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₂ CF ₃
30	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CFC1CBrF ₂
31	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CF ₂ CF ₂ CHF ₂
32	CH ₂ CF ₃	CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CHF ₂
33	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF
34	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₃
35	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₂ CBrF ₂
36	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF (CF ₃) ₂
37	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₃
38	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₃
39	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ F
40	CH ₂ CF ₃	CH ₂ Br
41	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ Br
42	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH=CH ₂
43	CH ₂ CF ₃	C (CH ₃) ₃
44	CH ₂ CF ₃	$C(CH_3) = CH_2$
45	CH ₂ CF ₃	CH (CH ₃) ₂
46	CF2CHFCF3	CH ₂ CFC1CF ₂ Br
47	CF2CF2CF2CHF2	$CH = CH_2$
48	CH ₂ CF ₃	CH ₂ CH ₂ CH ₂ CF ₃
49	CF2CF2CF2CHF2	CF ₂ CF ₂ CF ₂ CHF ₂
50	CF ₂ CHF ₂	CF ₂ CHF ₂

【0131】 【表3】

【表る】		
化合物番号	R	Q
51	CF2CF2CF2CHF2	CH 2CH 2CH 2CH 3
52	CH ₂ CF ₃	Br
53	CH 2CF 3	CF ₂ CF ₂ CF ₂ CF ₃
54	CH 2CF 3	CH2CFC1CF2C1

[0132]

次に、本発明化合物の中間体の製造につき、参考製造例を示す。

[0133]

参考製造例1

2-(3,3,3-トリフルオロプロピル)マロノニトリル

 $^{1}\,H-N\,M\,R$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. 3 2 ~ 2. 4 2 (2 H, m) , 2 . 4 3 ~ 2. 5 2 (2 H, m) , 3. 9 1 (1 H, t)

[0134]

参考製造例2

(2, 2, 3, 3-ヘキサフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1 H - NMR (CDC $_{13}$, TMS) $_{\delta}$ (ppm) : 4. 73 (2 H、t)、5. 97 (1 H、

tt)

[0135]

参考製造例3

$$CF_3CH_2$$
—OH + F_3C — S — CF_3 — CF_4 — C

2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2, 2, 2-トリフルオロエタノール2.0gを用い、参考製造例2に準じて、(2, 2, 2-ペンタフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1.2gを得た。

(2, 2, 2-トリフルオロエチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1 H - NMR (CDC 1 $_{3}$, TMS) δ (ppm) : 4. 71 (2 H、q)

[0136]

参考製造例 4

$$CF_3CF_2CH_2$$
—OH + F_3C —S—O—S— CF_3 — $CF_3CF_2CH_2$ —O—S— CF_3

2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2、2、3、3、3ーペンタフルオロプロパノール4.8gを用い、参考製造例2に準じて、(2、2、3、3、3ーペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル4.1gを得た。

(2、2、3、3、3-ペンタフルオロプロピル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

 $^{1}H-NMR$ (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 4. 72 (2H, t)

[0137]

参考製造例 5

2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに2、2、3、4、4 、4 - へ キサフルオロブタノール1 4. 1 g を用い、参考製造例2 に準じて、(2、2、3、4、4 、 4 - へキサフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル1 6. 5 g を得た。

(2、2、3、4、4、4-ヘキサフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル

 $^{1}H-NMR$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 4. 71~4. 79 (2H, m), 4. 92~5. 11 (1H, m)

[0138]

参考製造例6

 $(2, 2, 3, 3, 4, 4, 4 - ^ 7 9 7)$ トリフルオロメタンスルホン酸エステル

 1 H-NMR (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 4.80 (2H, t)

[0139]

参考製造例7

2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに 2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンタノール 1 3 9 g を用い、参考製造例 2 に準じて、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1 8 7 g を得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5-オクタフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 1 H - N M R (C D C $_{13}$, T M S) $_{\delta}$ (p p m) : 4. 8 2 (2 H、m)、6. 0 4 (1 H、t t)

[0140]

2, 2, 3, 3-テトラフルオロプロパノールの代わりに 2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプタノール 1 6. 6 gを用い、参考製造例 2 に準じて、(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 2 0. 5 gを得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル) トリフルオロメタンスルホン酸エステル

 $^{1}H-NMR$ (CDC1₃, TMS) δ (ppm) : 4.83 (2H, t), 6.07 (1H, tt)

[0141]

参考製造例 9

ジメチルスルホキシド20m1に(2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7ードデカフルオロヘプチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル 14.6gを溶解し、炭酸カリウム5.5gを加えた。ジメチルスルホキシド10m1に溶解したマロノニトリル2.6gをゆっくりと滴下し、室温で3時間撹拌した。反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2,2,3,3,4,4,5,5,6,6,7,7ードデカフルオロヘプチル)マロノニトリル2.0gを得た。

2-(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 6, 6, 7, 7-ドデカフルオロヘプチル) マロノニトリル

¹H-NMR (CDC 1₃, TMS) δ (ppm) : 2. 91 (2H, dt), 4. 14 (1H, t), 6. 05 (1H, tt)

[0142]

参考製造例10

ジメチルスルホキシド15m1に(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)トリフルオロメタンスルホン酸 8. 0 gを溶解し、炭酸カリウム 6. 9 gを加えた。ジメチルスルホキシド15m1に溶解したマロノニトリル5. 0 gをゆっくりと滴下し、室温で3時間撹拌した。反応混合物を水に注加し、ジエチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和食塩水で順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮した。残渣をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、2-(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル)マロノニトリル2. 0 gを得た。

2-(2, 2, 3, 4, 4, 4-ペンタフルオロブチル) マロノニトリル

 $^1\,\mathrm{H-NMR}$ (CDC13, TMS) δ (ppm) : 2. $7.9\,{\sim}\,2$. 9.1 (2H, m), 4. 15 (1 H, t), 4.84 \sim 5.04 (1 H, m)

[0143]

参考製造例11

トリフルオロメタンスルホン酸無水物 6.8gを0℃で2,2,3,3,4,4,5, 5, 5-ノナフルオロペンタノール5.0gにゆっくりと滴下した。室温にて5分間撹拌 し、さらに100℃で3時間撹拌した。その後、反応混合物を氷水に注加し、tーブチル メチルエーテルで抽出した。有機層を水、飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水で 順次洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した後、減圧下濃縮し、(2,2,3,3,4 , 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル)トリフルオロメタンスルホン酸エステル4. 7gを得た。

(2, 2, 3, 3, 4, 4, 5, 5, 5-ノナフルオロペンチル) トリフルオロメタン スルホン酸エステル

 1 H - NMR (CDC 1_{3} , TMS) δ (ppm) : 4.82 (2H, t)

$[0\ 1\ 4\ 4\]$

次に製剤例を示す。なお、部は重量部を表す。また、本発明化合物は前記の化合物番号 で表す。

[0145]

製剤例1

本発明化合物 (1) ~ (54) 9 部を、キシレン 37. 5 部およびジメチルホルムアミ ド37.5部に溶解し、これにポリオキシエチレンスチリルフェニルエーテル10部およ びドデシルベンゼンスルホン酸カルシウム6部を加え、よく撹拌混合して乳剤を得る。

[0146]

製剤例2

本発明化合物(1)~(54)40部にソルポール5060(東邦化学登録商標名)5 部を加え、よく混合して、カープレックス#80(塩野義製薬登録商標名、合成含水酸化 ケイ素微粉末)32部、300メッシュ珪藻土23部を加え、ジュースミキサーで混合し て、水和剤を得る。

[0147]

製剤例3

本発明化合物(1)~(54)3部、合成含水酸化珪素微粉末5部、ドデシルベンゼン スルホン酸ナトリウム5部、ベントナイト30部およびクレー57部を加え、よく撹拌混 合し、ついでこれらの混合物に適当量の水を加え、さらに撹拌し、増粒機で製粒し、通風 乾燥して粒剤を得る。

[0148]

製剤例4

本発明化合物(1)~(54)4.5部、合成含水酸化珪素微粉末1部、凝集剤として ドリレスB(三共社製)1部、クレー7部を乳鉢でよく混合した後にジュースミキサーで撹 拌混合する。得られた混合物にカットクレー86.5部を加えて、充分撹拌混合し、粉剤 を得る。

[0149]

製剤例5

本発明化合物(1)~(54)10部、ポリオキシエチレンアルキルエーテルサルフェ ートアンモニウム塩50部を含むホワイトカーボン35部及び水55部を混合し、湿式粉 砕法で微粉砕することにより、製剤を得る。

[0150]

製剤例6

本発明化合物 (1) ~ (54) 0. 5部をジクロロメタン 10部に溶解し、これをアイ ソパーM(イソパラフィン:エクソン化学登録商標名)89.5部に混合して油剤を得る

[0151]

製剤例7

本発明化合物(1)~(54)0.1部、ネオチオゾール(中央化成株式会社)49. 9部をエアゾール缶に入れ、エアゾールバルブを装着した後、25部のジメチルエーテル 及び25部のLPGを充填し、振とうを加え、アクチュエータを装着することにより油性 エアゾールを得る。

[0152]

製剤例8

本発明化合物(1)~(54)0.6部、BHT0.01部、キシレン5部、脱臭灯油 3.39部および乳化剤 {アトモス300(アトモスケミカル社登録商標名) | 1部を混 合溶解したものと、蒸留水50部とをエアゾール容器に充填し、バルブ部分を取り付け、 該バルブを通じて噴射剤(LPG)40部を加圧充填して、水性エアゾールを得る。

[0153]

製剤例9

0.5cm (厚さ)×69cm (長さ)×0.2cm (幅)のハニカム構造の紙細工片 を一方の端から巻いて、直径5.5cm、幅0.2cmの固形担体を作製した。本発明化 合物 (1) ~ (54) 5部をアセトン 95部に溶解した溶液を、該担体に均一に塗布した 後、アセトンを風乾させて、図1及び図2に示す製剤を得る。

[0154]

製剤例10

立体編地(商品名:フュージョン、型番:AKE69440、販売元:旭化成せんい株 式会社、厚さ:4. 3 mm、目付:3 2 1 g/m²、ポリアミド製)を直径 5 c mの円形 に裁断し、本発明化合物(1)~(54)5部をアセトン95部に溶解した溶液を、該立 体編地に均一に塗布した後、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

[0155]

製剤例11

エチレン-メタクリル酸メチル共重合体(メタクリル酸メチル含有量:10重量%、M FR=2 [g/10min]) 98重量部と本発明化合物 (1) ~ (54) 2重量部とを、45m mφ同方向二軸押出機にて130℃で溶融混練したのち、40mmφ押出機にて150℃で 溶融混練し、Tダイからシート状に押出し、冷却ロールにて冷却して、樹脂製剤を得る。

[0156]

製剤例12

エチレンー酢酸ビニル共重合体(酢酸ビニル含有量:10重量%、 $\mathrm{MFR}=2$ 〔 $\mathrm{g}/10$ min]) 98重量部と本発明化合物(1)~(54)2重量部とを、45mmø同方向二軸押 出機にて130℃で溶融混練したのち、40mm∮押出機にて150℃で溶融混練し、Tダ イからシート状に押出し、冷却ロールにて冷却して、樹脂製剤を得る。

[0157]

製剤例13

図3で示される折り畳み可能な構造を有する紙(2000cm²)に、本発明化合物(1)~(54)5部をアセトン95部に溶解した溶液を、該立体編地に均一に塗布した後 、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

[0158]

製剤例14

図4で示される折り畳み可能な構造を有する紙(2000cm²)に、本発明化合物(1)~(54)5部をアセトン95部に溶解した溶液を、該立体編地に均一に塗布した後 、アセトンを風乾させて、製剤を得る。

[0159]

製剤例15

本発明化合物 (1) \sim (54) 3. 6部とアセトン 14. 3部とを混合し溶液を得る。 これに、酸化亜鉛 0.2 部、 $\alpha-$ 澱粉 1.0 部及びアゾジカルボンアミド 42.8 部を加 え、水38.1部を加えて混練、押出機で顆粒状に成形、乾燥して製剤を得る。

[0160]

製剤例16

本発明化合物 (1) ~ (54) 2. 2部とアセトン8. 7部とを混合し溶液を得る。こ れを、アゾジカルボナミド/ニトロセルロース/酸化亜鉛/パーライトおよびポリビニル アルコールからから成る3~5mmの顆粒31部に含浸させた後、室温で乾燥することによ り燻煙剤用組成物を得る。過塩素酸カリウム、硝酸カリウム、硝酸グアニジン、糖類、粘 結剤、アルミナ及びカオリンから作製した1~4mmの顆粒状の可燃性組成物58.1部を 装着した直径3.5cm、高さ8cmの紙製の円筒容器に装填し、次にその上から燻煙剤用組 成物を装填し、メッシュがついた蓋をすることにより製剤を作製する。

[0161]

次に、本発明化合物が有害生物防除剤の有効成分として有効であることを試験例により 示す。なお、本発明化合物は前記の化合物番号で表す。

[0162]

試験例1

製剤例 5 により得られた本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(22), (23), (24), (28), (29), (30), (31), (32), 5), (36), (37), (38), (39), (46), (48), (49), 1)、(53)および(54)の製剤を有効成分濃度が500ppmとなるように希釈し 、試験用薬液を調製した。

一方、ポリエチレンカップに培土ボンソル2号(住友化学工業(株)製)50gを入れて 種子を10~15粒播種し、第2本葉が展開するまで生育させた後、高さを5cmに切り揃 えたイネに対し、上記のように調製した試験用薬液を20m1/カップの割合で散布した 。イネに散布処理された薬液が乾燥した後、供試虫逃亡防止のためのプラスチックカップ に入れ、トビイロウンカの初齢幼虫を30頭放して蓋をし、その後温室内〈25℃〉に静 置した。トビイロウンカの幼虫を放してから6日後に当該イネに寄生するトビイロウンカ の数を調査した。

その結果、本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(22)、(23) (24), (28), (29), (30), (31), (32), (35), (36) (37), (38), (39), (46), (48), (49), (51), (53) および(54)のの処理において、寄生する虫数は3頭以下であった。 あった。

[0163]

試験例2

製剤例 5 により得られた本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(9), (10), (11), (17), (20), (21), (22), (23), (24), (25), (27), (29), (30), (31), (32), (35), (36 (37), (38), (39), (46), (47), (48), (49), (50 (51)、(52)、(53)および(54)の製剤を有効成分濃度が500ppm となるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。

直径 5.5 cmのポリエチレンカップの底に同大の濾紙を敷き、上記試験用薬液 0.7 m 1を濾紙上に滴下し、餌としてショ糖30mgを均一に入れた。該ポリエチレンカップ内 にイエバエ(Musca domestica)雌成虫10頭を放ち、蓋をした。24時 間後にイエバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(1)、(2)、(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、

```
(11), (17), (20), (21), (22), (23), (24), (25),
(27), (29), (30), (31), (32), (35), (36), (37),
(38), (39), (46), (47), (48), (49), (50), (51),
(52)、(53) および(54) の処理においては死虫率90%以上を示した。
```

[0164]

試験例3 製剤例5により得られた本発明化合物(3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(17), (20), (21), (22), (23), (24), (25), (27), (29), (30), (31), (32), (35), (36), (37), (38), (46)、(47)、(48)、(50)、(52)、(53)および(54)の製剤を有 効成分濃度が500ppmとなるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。 直径 5.5 cmのポリエチレンカップの底に同大の濾紙を敷き、上記試験用薬液 0.7 m 1を濾紙上に滴下し、餌としてショ糖30mgを均一に入れた。該ポリエチレンカップ内 にチャバネゴキブリ (Blattalla germanica) 雄成虫2頭を放ち、蓋 をした。6日後にチャバネゴキブリの生死を調査し死虫率を求めた。 その結果、本発明化合物 (3)、(4)、(5)、(9)、(10)、(17)、), (21), (22), (23), (24), (25), (27), (29), (30), (31), (32), (35), (36), (37), (38), (46), (47

)、(48)、(50)、(52)、(53)および(54)の処理においては死虫率1 00%を示した。

[0165]

試験例4

製剤例 5 により得られた本発明化合物(1)、(3)、(8)、(9)、(1 0)、(11), (12), (20), (21), (22), (23), (28), (29), (30), (31), (32), (35), (36), (37), (38), (39), (43)、(46)、(47)、(48)、(49)、(51)、(53) および(54) の製剤を有効成分濃度が500ppmとなるように水で希釈し、試験用薬液を調製した。 上記試験用薬液 0. 7 m l をイオン交換水 1 0 0 m l に加えた(有効成分濃度 3. 5 p p m)。該液中にアカイエカ (Culex pipiens pallens)終令幼虫2 0頭を放ち、1日後にその生死を調査し死虫率を求めた。 その結果、本発明化合物(1)、(3)、(8)、(9)、(10)、(11)、(12), (20), (21), (22), (23), (28), (29), (30), (31), (32), (35), (36), (37), (38), (39), (43), (46)、(47)、(48)、(49)、(51)、(53)および(54)の処理において は死虫率90%以上を示した。

[0166]

試験例5

本発明化合物 (20)、(23)、(24)、(30)、(31)、(35) および(37) の0.057% (w/v) アセトン溶液を調製し、該溶液0.2mlを直径3.8 c mの濾紙上に均一に滴下し風乾した(本発明化合物として100mg/m2処理に相当)。ネコノミ (Ctenocephalised felis) 成虫約20頭を200m 1 ガラス瓶内に放った後、該濾紙をガラス瓶の蓋内部に該濾紙を填め込んだ蓋にて密封し た。24時間後にネコノミの生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(20)、(23)、(24)、(30)、(31)、(35) および (37) の処理においては死虫率80%以上を示した。

[0167]

試験例6

本発明化合物 (23)、(24)、(30) および (31) の0.2% (w/v) ジエ チレングリコールモノエチルエーテル溶液を調製し、該溶液 0.1 mlをマウス雌(生体 重約30g)の背線に経皮投与した。該マウスを袋状の金網の中に挟み固定した後、底部 に濾紙を敷いた900m1ガラス瓶内に入れた。ネコノミ(Ctenocephalis ed felis)成虫20頭を該ガラス瓶内に放ち、該ガラス瓶の上部をナイロンネッ トにて蓋をした。24時間後にネコノミの生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(23)、(24)、(30)および(31)の処理において は死虫率95%以上を示した。

[0168]

試験例7

本発明化合物 (31) の0.25% (w/v) メタノール溶液を調製し、該溶液0.2 2 m l を縦5. 7 c m、横16. 4 c mのパウチフィルム (コクヨ製) の表面 (周囲5 m m幅を除く部分)に均一に滴下し風乾した(本発明化合物として75mg/m2処理に相 当)。該フィルムを2つ折りし、周囲5mm幅の部分をヒートシールして袋状とした。該 袋内にフタトゲチマダニ (Haemaphysalis longicornis) の若 ダニ10頭を入れ、開放部をクリップにて閉じ密封した。48時間後にフタトゲチマダニ の生死を調査し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率100%を示した。

[0169]

試験例8

本発明化合物 (31) の2% (w/v) アセトン溶液を調整し、該溶液2.5 mlを1 0 c m×12.5 c mの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅70 c m×奥行き70 c m×高さ70 c mのガラスチャンバーの天井中央から吊るした後、オオキモンノミバエ (Megaselia spiracularis)成虫約20頭を放った。2時間経過 後に全供試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にオオキモン ノミバエの生死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率100%を示した。

[0170]

試験例9

本発明化合物(31)の2%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液2.5mlを1 0 c m×12.5 c mの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅70 c m×奥行き70 cm×高さ70cmのガラスチャンバーの天井中央から吊るした後、オオチョウバエ(C logmia albipunctata) 成虫約20頭を放った。2時間経過後に全供 試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にオオチョウバエの生 死を調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率83%を示した。

[0171]

試験例10

本発明化合物(31)の1%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液5mlを10c m×25cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅1.8m×奥行き1.8m×高 さ1.8mのピートグラディチャンバーの天井中央から吊るした後、アカイエカ (Си1 pipiens pallens) 雌成虫約50頭を放った。1時間経過後に全供 試虫を回収し、5%砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にアカイエカの生死を 調査し死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率86%を示した。

[0172]

試験例11

本発明化合物(31)の1%(w/v)アセトン溶液を調整し、該溶液5mlを10c m×25cmの濾紙に均一に滴下し風乾した。該濾紙を幅1.8m×奥行き1.8m×高 さ1.8mのピートグラディチャンバーの天井中央から吊るした後、イエバエ(Musc domestica)成虫約50頭を放った。1時間経過後に全供試虫を回収し、5 %砂糖水を与え、25℃で保管した。24時間後にイエバエの生死を調査し死虫率を求め た。

その結果、本発明化合物(31)の処理においては死虫率92%を示した。

[0173]

試験例12

本発明化合物 (31) を0.05%、 (w/v) Sudan red 7B アセトン溶液にて希釈し、0 .005% (w/v) の溶液を調製した。該溶液 0.2μ 1 をイエシロアリ(Coptotermes fo rmosanus)の職蟻の胸部背面に滴下処理した。処理1日後に生死を観察し、死虫率を算出 した。

その結果、本発明化合物(31)の処理において、死虫率100%を示した。

[0174]

試験例13

アイソパーM (イソパラフィン、エクソン化学登録商標名) 90重量部、ジクロロメタ ン10重量部を混合した混合溶液30mlに、本発明化合物(31)7.5mgを溶解し 0:025% (w/v) の油剤を調製した。チャバネゴキブリ (Blattella germanica) 成 虫10頭(雄雌各5頭)を入れたプラスチック容器(直径9.5cm、高さ4cm、底部 16メッシュ金網)を、CSMAチャンバー(幅46cm、奥行き46cm、高さ70c m: Standard of Chemical Specialties Manufacturers Association) の底部に置いた。 前記油剤1.5mlをCSMAチャンバー上部より供試ゴキブリに直撃噴霧した。噴霧30秒後 、ゴキブリの入った容器を取り出し、全ゴキブリを別の清潔なプラスチック容器(200 ml) 内に移し、餌と水を与えた。薬剤処理後3日後に観察し、死虫率を求めた。

その結果、本発明化合物(31)の処理において、死虫率100%を示した。

[0175]

試験例14

本発明化合物(4)、(20)、(22)、(23)、(24)、(29)、(30) (31)、(35)、(36)、(37)、(38) および(46)の1%(w/v) のアセトン溶液を調製した。該アセトン溶液 1μ lをチャバネゴキブリ雌成虫(Blattella germanica)の胸部腹面側に滴下処理した後、直径約9cm高さ約4.5cmのプラスチックカッ プへ移し、餌と水を与えた。25℃で保管し、7日後に生死を観察し死虫率を求めた。チャ バネゴキブリは1カップあたり10頭とし、3反復試験を行った。

その結果、本発明化合物(4)、(20)、(22)、(23)、(24)、(29) 、(30)、(31)、(35)、(36)、(37)、(38)および(46)の処理 において死虫率100%を示した。

[0176]

試験例15

本発明化合物 (23)、(24) および (31) の2.5% (w/v) のアセトン溶液を 調製し、該溶液0.1m l を2 c m×2 c mの濾紙(アドバンテック社製)に滴下含浸させ風 乾した。該濾紙を幅10cm×高さ2cm×奥行き7cmの紙製の箱の内部底面中央に両面テ ープで貼り付けて、箱の蓋を完全に閉じた。該箱の $10 \, \mathrm{cm} \times 2 \, \mathrm{cm}$ の $1 \, \mathrm{m} \, \mathrm{m} \, \mathrm{m} \, \mathrm{m} \, \mathrm{e} \, \mathrm{m}$ cmの穴を1カ所開け、 $25cm \times 20cm \times$ 高さ8cmのプラスチック製バット内に設置し、 餌、水とともにチャバネゴキブリ(Blattella germanica)雌雄各10頭を放った。プラスチ ックバットの内部壁面部にはゴキブリ逃亡防止のためタルクを塗った。25℃で保管し、7 日後にチャバネゴキブリを観察し死虫率を求めた。試験は2反復行った。

その結果、本発明化合物(23)の処理区では97.5%、(24)および(31)の処理 区では100%の死虫率を示した。

【図面の簡単な説明】

[0177]

【図1】製剤例9の固形担体の上面図である。

[0178]

【図2】製剤例9の固形担体の斜視図である。

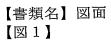
[0179]

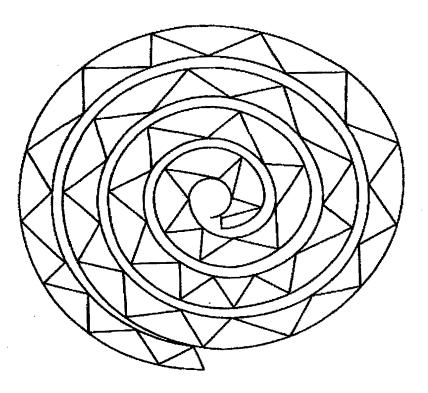
【図3】製剤例13の折り畳み可能な構造を有する紙を示す説明図である。(a)のよ

うに折り畳まれてなる紙は、面状部材の一辺を軸として擺動することにより、例えば(b)のように筒状材が180°ひろがり、使用時の一形態となる。

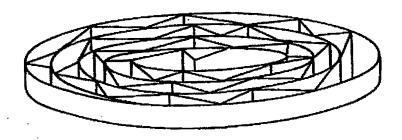
[0180]

【図4】製剤例14の折り畳み可能な構造を有する紙を示す説明図である。(a)のように折り畳まれてなる紙は、相対する面状部材を互いに引き離すことにより、(b)のように筒状材をひろげることができる。

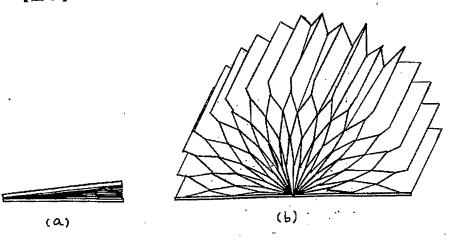




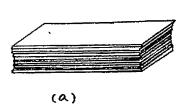
【図2】

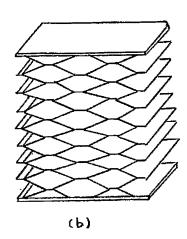


【図3】



【図4】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】

有害生物に対して、優れた防除効力を有する化合物及び該化合物による有害生物の防除 方法を提供すること。

【解決手段】

式 (I)

$$R-CH_2-C-CH_2-Q \qquad (I)$$

CN 〔式中、RはC1-C4フルオロアルキル基を表し、Qはハロゲン原子、ハロゲン原子で 置換されていてもよいC1-C6アルキル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2 -C6アルケニル基、ハロゲン原子で置換されていてもよいC2-C6アルキニル基、ハ ロゲン原子で置換されていてもよいC3-C7シクロアルキル基又はハロゲン原子で置換 されていてもよい (C3-C7シクロアルキル) C1-C4アルキル基を表す。〕で示さ れるニトリル化合物は有害生物に対して優れた防除効力を有する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号

特願2004-036230

受付番号

5 0 4 0 0 2 3 2 1 4 7

書類名

特許願

担当官

第六担当上席

0 0 9 5

作成日

平成16年 2月18日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】

000002093

【住所又は居所】

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

【氏名又は名称】

住友化学工業株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】

100093285

【住所又は居所】

大阪府大阪市中央区北浜4-5-33 住友化学

知的財産センター株式会社内

【氏名又は名称】

久保山 隆

【選任した代理人】

【識別番号】

100113000

【住所又は居所】

大阪府大阪市中央区北浜4-5-33 住友化学

知的財産センター株式会社内

【氏名又は名称】

中山亨

【選任した代理人】

【識別番号】

100119471

【住所又は居所】

大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 住友

化学知的財産センター株式会社

【氏名又は名称】

榎本 雅之

特願2004-036230

出願人履歴情報

識別番号

[000002093]

1. 変更年月日

1990年 8月28日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

氏 名

住友化学工業株式会社

2. 変更年月日 [変更理由]

2004年10月 1日

名称変更

住所変更

住 所

東京都中央区新川二丁目27番1号

氏 名

住友化学株式会社